RESONANTE FREQUENZUMSETZUNG VON LASERSTRAHLUNG IN METALLDÄMPFEN

Inaugural-Dissertation
zur
Erlangung des Doktorgrades der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Universität Düsseldorf

vorgelegt von
Jens Heinrich
aus Stuttgart

Düsseldorf 1983

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41543905_0075

RESONANTE FREQUENZUMSETZUNG VON LASERSTRAHLUNG IN METALLDÄMPFEN

I n a u g u r a l - D i s s e r t a t i o n

zur

Erlangung des Doktorgrades der

Mathematisch- Naturwissenschaftlichen Fakultät

der Universität Düsseldorf

vorgelegt von

Jens Heinrich

aus Stuttgart

Düsseldorf 1983

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

1. Berichterstatter: Prof. Dr. W. Behmenburg

2. Berichterstatter: Prof. Dr. D. Schmid

Tag der mündlichen Prüfung: 8. Februar 1983

Inhaltsverzeichnis

		Seite
0.	Einleitung	1
1.	Theoretische Grundlagen	11
1.1.	Semiklassische Theorie	11
1.2.	Stationäre Störungsrechnung	15
1.3.	Kleinsignalnäherung	17
1.4.	Sättigungsmechanismen	20
1.5.	Anwendung der Störungsrechnung mit Ratengleichungsnäherung auf ein Vierniveausystem	22
1.5.1.	Prozesse erster Ordnung	23
1.5.2.	Prozesse zweiter Ordnung	28
1.5.3.	Prozesse dritter Ordnung	29
1.5.4.	Prozesse höherer Ordnung	35
1.5.5.	Auswirkungen von Besetzungenänderungen, Linienbreiten und Linienverschiebungen in den Suszeptibilitäten	37
1.5.6.	Wellengleichungen und Ratengleichungen	38
2.	Experimentelle Untersuchungen am Barium	42
2.1.	Experimenteller Aufbau	43
2.1.1.	Die Primärlichtquellen	45
2.1.2.	Der Heatpipe-Ofen	50
2.1.3.	Das Nachweissystem	53
2.2.	Diskussion der Ergebnisse	54
2.2.1.	Frequenzverdreifachung und Dreiphotonen-Summenfrequenzmischung	55
2.2.2.	Kopplung zweier Laserphotonen mit einem Idlerphoton	59
2.2.3.	Weitere Kopplungsschemata	69
3.	Untersuchungen am Cadmium	73
3.1.	Numerische Modellrechnungen zu den Cadmium-experimenten	74

Seite

3.1.1. Diskussion der Näherungen und Vernachlässigter Terme 76

3.1.2. Analytische Abschätzungen zur optisch gepumpten stimulierten Emission 91

3.1.3. Analytische Abschätzungen zur parametrischen Vierwellenkopplung 98

3.2. Experimenteller Aufbau 102

3.2.1. Der Primärlaser 104

3.2.2. Die Cadmiumzelle 105

3.2.3. Das Nachweissystem 107

3.2.4. Die Microcomputersteuerung 111

3.3. Diskussion der Ergebnisse 114

3.3.1. Frequenzverdreifachung und andere Kopplungsschemata 114

3.3.2. Summenfrequenzmischung zweier Laserphotonen mit einem Idlerphoton 117

3.3.3. Absolutleistungen und zeitliches Verhalten der erzeugten Komponenten 145

4. Schlußbemerkungen 153

Zusammenfassung 155

Literaturverzeichnis 159

Anhang 166

Geräteliste 174

Dank 176

Lebenslauf 179

0. Einleitung

Die sprunghafte Entwicklung der nichtlinearen Optik hat parallel zur Entwicklung der ersten Laserlichtquellen eingesetzt. Schon 1961 haben Franken und Mitarbeiter /1/ in anisotropen Kristallen die zweite Harmonische von Rubinlaserstrahlung erzeugt und damit die Möglichkeit der Frequenzumsetzung durch nichtlineare optische Prozesse gezeigt. Um den Frequenzbereich der erzeugten Strahlung ins VUV und ins ferne IR auszudehnen, wo nahezu alle anisotropen Kristalle opak sind, wurden zu Ende der 60er Jahre erste Experimente mit Edelgasen von New und Ward /2/ sowie mit Metalldämpfen von Miles und Harris /3/ durchgeführt. Bei diesen isotropen Medien sind Prozesse gerader Ordnung aus Symmetriegründen verboten, so daß primär Prozesse dritter Ordnung wie Frequenzverdreifachung, parametrische Vierwellenkopplung und Dreiphotonen Summen- und Differenzfrequenzmischung, aber auch Prozesse fünfter Ordnung wie Frequenzverfünffachung und Hyperramanstreuung untersucht worden sind. Um die Effizienz dieser Prozesse zu erhöhen, schlugen Miles und Harris /4/ vor, die Primärlichtquellen auf atomare Resonanzen, speziell Zweiphotonenresonanzen, abzustimmen. In der Folgezeit wurden zweiphotonenresonante Frequenzmischprozesse in Metalldämpfen im Hinblick auf ihre Eignung für die verschiedensten Anwendungsgebiete systematisch untersucht. Als Beispiele seien hier die Spektroskopie autoionisierender Zustände des Strontiums

von Hodgson und Mitarbeitern /5/, die Bestimmung von atomaren Oszillatorenstärken von Wynne und Beigang /6/, die Erzeugung kohärenter 16 µm-Strahlung für die Uranisotopentrennung von Reif und Walther /7/ sowie die Erzeugung kohärenter Lyman-Alpha Strahlung am Beryllium für die Diagnostik von Wasserstoffplasmen von Mahon und Mitarbeitern /8/ sowie Langer /9/ genannt.

In theoretischen Untersuchungen wurden zweiphotonenresonante Frequenzmischprozesse meist semiklassisch behandelt, wobei die Grundgleichungen teils analytisch im Rahmen der Störungstheorie (s. z.B. Puell und Vidal/10/) oder der "adiabatic following approximation" (Grishkowski /11/), teils direkt numerisch (Louisell und Meystre /12/) gelöst wurden. Im Bereich niedriger Eingangsintensitäten (unterhalb 10^7 W/cm^2) lassen sich mit der Störungstheorie im Rahmen der Kleinsignalnäherung analytische Lösungen der semiklassischen Grundgleichungen angeben.

Bei höheren Eingangsintensitäten, typisch ab 10^7 - 10^8 W/cm^2, wurden bei zweiphotonenresonanten Prozessen Sättigungseffekte beobachtet (s. z.B. Ward und Smith /13/), die größtenteils auf konkurrierende nichtlineare Prozesse zurückzuführen sind.

- Durch Zweiphotonenabsorption und Mehrphotonenionisation kommt es zu einer Anregung des Mediums, verbunden mit der Entleerung des atomaren Grundzustandes (atomic depletion /14/), die u.a. eine Zerstörung der Phasenanpassung zur Folge hat.

- Die Phasenanpassung wird auch durch intensitätsabhängige Anteile des Brechungsindex (s. z.B. /15/, /16/) zerstört.
- Der intensitätsabhängige Brechungsindex bewirkt eine Selbstdefokussierung bzw. Selbstfokussierung der Primärstrahlung; die hierbei auftretende Überhöhung der Primärintensität kann elektrische Gasdurchbrüche bewirken.
- Die Anregung des Mediums (atomic depletion) ist unter gewissen experimentellen Bedingungen verbunden mit einer Schwächung der Primärstrahlung (pump depletion /14/).
- Der dynamische Stark-Effekt bewirkt eine Verschiebung bzw. Aufspaltung der atomaren Niveaus /17/, /18/.

Um diese Effekte im Rahmen der Störungstheorie zu berücksichtigen, sind Korrekturen gegenüber der Kleinsignalnäherung notwendig. Entsprechende Formalismen sind u.a. von Puell und Mitarbeitern /19/ sowie von Stappaerts /20/ eingeführt worden.

Gegenstand der vorliegenden Arbeit ist ein spezieller zweiphotonenresonanter Prozess, die Summenfrequenzmischung $\omega_F = 2\omega_L + \omega_I$ zweier Laserphotonen ω_L mit einem im mischenden Medium erzeugten resonanten Idlerphoton ω_I. Der Prozess ist als neue Methode zur Erzeugung festfrequenter kohärenter Strahlung im UV und VUV und damit als Alternative zur Frequenzverdreifachung zu sehen. Da die erzeugte Frequenz ω_F i.a. energetisch unterhalb der Ionisationsgrenze des nichtlinearen Mediums in der Nähe von Einphotonenresonanzen liegt,

ist durch die zusätzliche resonante Überhöhung der Erzeugungsrate mit einer hohen Effizienz zu rechnen. Je nach Termstruktur des Mediums treten mehrere Idlerkomponenten ω_I parallel auf, so daß mehrere Summenfrequenzkomponenten im gleichen experimentellen Aufbau erzeugt werden können.

Die Zielsetzung der vorliegenden Arbeit war eine experimentelle und theoretische Untersuchung der Sättigungseffekte bei der Summenfrequenzmischung, wobei im Hintergrund stand, Kriterien für die Wahl der experimentellen Bedingungen zu finden, die eine Maximierung der Konversionsrate ermöglichen.

Der untersuchte Prozess ist über den Rahmen der Arbeit hinaus von allgemeinem theoretischen Interesse, da die Erzeugung der Idlerphotonen bei allen zweiphotonenresonanten Prozessen als konkurrierender Mechanismus beteiligt ist. Die hier dargelegten Ergebnisse sind daher direkt auf eine theoretische Beschreibung der zweiphotonenresonanten Frequenzverdreifachung bzw. Summen- und Differenzfrequenzmischung zweier Primärlichtquellen übertragbar. Sie stellen in diesem Punkt eine exaktere Beschreibung als der von Puell /19/ gewählte Formalismus dar.

Die Erzeugung der Idlerphotonen wurde in älteren Arbeiten vorwiegend auf parametrische Vierwellenkopplung (Hartig /21/), Hyperramanstreuung (Reif /7/) bzw. eine Überlagerung der beiden Effekte (Schöne /22/) zurückgeführt. Die experimen-

tellen und theoretischen Ergebnisse der vorliegenden Arbeit zeigen, daß die Idlerphotonen durch eine Überlagerung aus optisch gepumpter stimulierter Emission (OPSE) und parametrischer Vierwellenkopplung bzw. Differenzfrequenzmischung erzeugt werden.

Die experimentellen Untersuchungen wurden am Barium /23/, /24/ und am Cadmium /25/ durchgeführt. Dabei sind die Untersuchungen am Barium als Vorversuche zu werten, mit dem Ziel, verschiedene Primärlichtquellen zu erproben und ein phänomenologisches Verständnis für die Effekte sowie Aufschluß über die Größenordnung der erzielbaren Konversionsraten zu erlangen. Es zeigte sich, daß bei der Kopplung zweier Laserphotonen mit einem Idlerphoton Konversionsraten bis zu 10^{-3} im nahen UV (250 - 380 nm), deutlich höher als bei der Frequenzverdreifachung unter gleichen experimentellen Bedingungen (Primärleistung ca. 1 MW, Teilchendichte ca. 10^{16} cm^{-3}) erzielbar waren. Die hohe Effizienz dieses Prozesses ist, wie schon oben angedeutet, primär darauf zurückzuführen, daß die erzeugte Strahlung energetisch in der Nähe starker Einphotonenresonanzen liegt, wodurch die nichtlineare Suszeptibilität ohne Reabsorption der erzeugten Strahlung erhöht wird. Diese Interpretation ist in Übereinstimmung mit Experimenten von Bokor und Mitarbeitern /26/ sowie Tomkins und Mahon /27/ am Quecksilber, bei denen mit Primärleistungen der Größenordnung MW einige kW VUV-Strahlung erzeugt werden konnten.

Den Hauptteil der vorliegenden Arbeit bilden jedoch die Untersuchungen an der Cadmium-Zweiphotonenresonanz $5s^2\ {}^1S_0 \rightarrow 5s6s\ {}^1S_0$ (λ_L = 375 nm). Dieses System weist gegenüber Barium vier entscheidende Vorteile auf:

- Durch die relativ einfache Termstruktur (keine doppelt angeregten Zustände unterhalb der Ionisationsgrenze) tritt bei Abstimmung der Primärstrahlung auf die tiefste Zweiphotonenresonanz nur eine Idler- und eine zugehörige Summenfrequenzkomponente auf. Ein quantitativer Vergleich experimenteller Ergebnisse mit Modellrechnungen ist daher möglich.
- Die Idlerkomponente liegt im nahen IR (λ_I = 1040 nm). Zur Vermessung der Idlerintensität sind daher keine aufwendigen Detektoren nötig.
- Die Summenfrequenzkomponente wird im VUV (λ_F = 159 nm), einem technologisch interessanteren Gebiet als dem nahen UV, erzeugt.
- Die große Einphotonenresonanzabweichung der Primärstrahlung ist mit einer relativ hohen Sättigungsintensität (10^8 W/cm^2) für zweiphotonenresonante Prozesse verbunden, so daß das Auftreten von Sättigungseffekten erst bei höheren erzeugten Intensitäten zu erwarten ist.

Aus diesen Vorteilen ergaben sich die methodischen Ansätze zur Untersuchung der Summenfrequenzmischung im Sättigungsbereich:

- Durchführung von numerischen Modellrechnungen zur Beschreibung der Erzeugung der Idler- und Summenfrequenzkomponente.
- Eine spezielle Analyse der Erzeugungsmechanismen der Idlerkomponente, verbunden mit analytischen Abschätzungen zum Verständnis der Ergebnisse der numerischen Rechnung.
- Messung der Relativabhängigkeiten der Idler- und Summenfrequenzkomponente von den wesentlichen Versuchsparametern Cadmiumteilchendichte, Intensität und Resonanzabweichung der Primärstrahlung. Vergleich der gemessenen Abhängigkeiten mit berechneten als Test des den numerischen Rechnungen zugrundegelegten Modells.
- Vergleich zwischen gemessenen und berechneten Absolutleistungen und Diskussion von auftretenden Diskrepanzen zwischen Rechnung und Experiment anhand der im Modell beinhalteten Näherungen.

Die Modellrechnungen wurden auf der Basis der Störungstheorie durchgeführt, wobei als Sättigungsmechanismus die Umverteilung der atomaren Besetzungen ähnlich wie bei Puell /19/ in einem stationären Ratengleichungssystem berücksichtigt wurden. Bei diesem Ansatz müssen zwar eine Reihe von Näherungen in Kauf genommen werden, er bietet jedoch gegenüber einer direkten numerischen Integration der semiklassichen Grundgleichungen den Vorteil, daß die Rechnungen mit einem wesentlich geringeren numerischen Aufwand über einen wesentlich größeren Bereich von Parametern durchführbar sind.

Ein weiterer Vorteil der Störungsrechnung ist darin zu sehen, daß sie eine detaillierte Analyse der Idlererzeugung ermöglicht, weil erst in der Reihenentwicklung nach Potenzen der Störung eine gesonderte Betrachtung der einzelnen Elementarprozesse der Idlererzeugung (OPSE , parametrische Vierwellenkopplung, Hyperramanstreuung) durchgeführt werden kann. Zu diesen Prozessen lassen sich analytische Abschätzungen angeben, die zum Verständnis der Ergebnisse der numerischen Rechnungen beitragen. Eine experimtentelle Analyse dieser Elementarprozesse, von denen ein unterschiedliches Frequenzverhalten erwartet wird, ist durch eine Messung der spektralen Verteilung der Idlerkomponente möglich.

Für die experimentellen Untersuchungen fiel die Wahl des Primärlasers für den Wellenlängenbereich um 375 nm auf ein XeCl-Laser gepumptes UV-Farbstofflasersystem (Oszillator/ Nachverstärker, Pulsenergie ≅ 3mJ, 6ns Pulsdauer), das gegenüber Nd:Yag-Laser gepumpten Systemen vor allem wegen des durch direkte Laseraktion ohne Frequenzverdopplung möglichen einfacheren Aufbaues vorgezogen wurde.

Die Primärstrahlung wurde nur schwach in den Cadmiumdampf fokussiert, um die Annahme ebener Wellen in den Rechnungen zu rechtfertigen. Aufgrund der hohen Primärleistung konnten dennoch Intensitäten bis 10^8 W/cm^2, entsprechend der Sättigungsintensität, erzielt werden. Diese obere Grenze für die Primärintensität erschien auch deshalb sinnvoll, weil bei

höheren Intensitäten weitere Sättigungseffekte (intensitätsabhängiger Brechungsindex, dynamischer Stark-Effekt) ins Spiel kommen, die in der Rechnung vernachlässigt werden.

Zur Erzeugung des Cadmiumdampfes wurde anstelle des ansonsten üblichen Heatpipe-Ofens eine homogen heizbare Zelle entwikkelt, da in dieser Konzeption eine Beimischung von Edelgasen weniger aufwendig erschien und die Homogenität des Gemisches gewährleistet ist. Aufgrund der verwendeten Fenstermaterialien und Dichtungen war die Betriebstemperatur auf maximal 500°C beschränkt, entsprechend einer Cadmiumteilchendichte der Größenordnung 10^{17} cm^{-3}. Hiervon ausgehend wurde die Zellenlänge mit L = 8 cm hinreichend klein gewählt, um eine Schwächung der Primärstrahlung in den Modellrechnungen vernachlässigen zu können.

Die Messungen der Relativabhängigkeiten der Idler- und Summenfrequenzkomponente wurden -in Anlehnung an die stationäre Näherung in den Modellrechnungen- weitgehend zeitintegriert durchgeführt. Die Parameter Cadmiumteilchendichte und Primärintensität wurden um etwa eine Größenordnung unterhalb der Maximalwerte (s.o.) variiert. Der Meßbereich der Resonanzabweichung wurde den durch Sättigungsverbreiterung bestimmten Linienprofilen angepaßt. Die Resonanzabweichung wurde -sofern die Meßwerte noch deutlich über dem Rauschen lagen- über einige Sättigungsbreiten variiert.

Bezüglich der Absolutleistungen können an die Modellrechnungen keine zu hohen Erwartungen geknüpft werden. Es ist zu erwarten, daß die zugrunde gelegten Näherungen zu einer Verfälschung des Ergebnisses führen. Die Gültigkeit der einzelnen Näherungen wurde deshalb in Abschätzungen diskutiert; speziell bei der Näherung der Stationarität konnten die Abschätzungen durch zeitaufgelöste Messungen und den Vergleich mit einer zeitabhängigen semiklassischen Rechnung /28/ ergänzt werden.

1. Theoretische Grundlagen

Die Wechselwirkung zwischen Licht und Materie kann mit verschiedenen theoretischen Formalismen, rein quantenmechanisch oder semiklassisch, beschrieben werden. Obwohl in jüngster Zeit Vierwellenkopplungsprozesse mit dem "dressed atom approach" auch rein quantenmechanisch behandelt wurden /17/, /29/, wird die semiklassische Theorie -meist in Verbindung mit der Störungsrechnung- doch traditionell für die Beschreibung nichtlinearer optischer Prozesse vorgezogen /30/.

1.1. Semiklassische Theorie

In der semiklassischen Theorie wird das atomare Ensemble (der hier dargelegte Formalismus beschränkt sich auf isotrope Medien) quantenmechanisch, das Strahlungsfeld klassisch behandelt. Speziell bei Frequenzmischprozessen ist man an der räumlichen und zeitlichen Entwicklung der Feldstärke E interessiert, die über die Maxwell'schen Gleichungen mit der Polarisation P des atomaren Ensembles verknüpft ist. Setzt man Feldstärke und Polarisation als Summe aus mehreren, linear polarisierten Fourierkomponenten an

$$E = \sum E_j (z,t)\, e^{i (k_j z - \omega_j t)} + c.c.$$

$$P = \sum P_j (z,t)\, e^{i (k_j z - \omega_j t)} + c.c. \qquad (1)$$

so erhält man unter Vernachlässigung der zweiten Ableitungen der Amplituden (slow wave approximation)

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} - \frac{1}{c}\frac{\partial}{\partial t}\right) E_j = \frac{i\omega_j P_j}{2c\varepsilon_0} \qquad (2)$$

Der hier dargelegte Formalismus beschränkt sich durchgehend auf ebene Wellen. Eine Behandlung der Effekte starker Fokussierung ist u.a. bei Ward und New /31/ und Bjorklund /32/ zu finden. Der Zusammenhang zwischen Feldstärke und Intensität ergibt sich zu /33/

$$I = \frac{c\varepsilon_0}{2} |E|^2 \qquad (3)$$

In Dipolnäherung läßt sich die Polarisation darstellen als Erwartungswert des Dipoloperators (atomare Polarisation) multipliziert mit der Teilchendichte

$$P = N < \mu > = N \, Tr \, (\rho\mu) \qquad (4)$$

wobei die Dichtematrix ρ den Zustand des atomaren Ensembles beschreibt. Sie genügt der Bewegungsgleichung

$$\dot{\rho} = -\frac{i}{\hbar}[H,\rho] \qquad (5)$$

die in phänomenologischer Weise durch dissipative Terme ergänzt wird /30/

$$\dot{\rho} = -\frac{i}{\hbar}\left[H,\rho\right] + R\rho \qquad (6)$$

Hierbei ist H der Hamiltonoperator und R ein Relaxationsoperator, dargestellt durch die Matrix der transversalen und longitudinalen Relaxationskonstanten des atomaren Ensembles $\Gamma_{\alpha\beta}$, $\Gamma_{\alpha\alpha}$.

Der Hamiltonoperator läßt sich zerlegen in

$$H = H^{\circ} + H' \qquad (7)$$

wobei H° der Hamiltonoperator des ungestörten Systems ist, und H' den Einfluß des Lichtfeldes E beschreibt. In der Dipolnäherung ergibt sich

$$H' = -\mu E \qquad (8)$$

und damit

$$\dot{\rho} = -\frac{i}{\hbar}\left[H^{\circ},\rho\right] + \frac{iE}{\hbar}\left[\mu,\rho\right] + R\rho \qquad (9)$$

Das Gleichungssystem, bestehend aus den Feldgleichungen und den Bewegungsgleichungen der Diagonal- und Nichtdiagonalelemente der Dichtematrix, hat dann die Struktur

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} - \frac{1}{c}\frac{\partial}{\partial t}\right) E_j = \frac{i\omega_j}{2c\epsilon_0} N \Sigma \mu_{\alpha\beta} \rho_{\alpha\beta} \qquad (10)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho_{\alpha\beta} = -i \rho_{\alpha\beta} \omega_{\alpha\beta} + \frac{i}{\hbar} \Sigma\{\mu_{\alpha\gamma}\rho_{\gamma\beta} - \rho_{\alpha\gamma}\mu_{\gamma\beta}\} \cdot$$

$$E_j e^{i(k_j z - \omega_j t)} \qquad (11)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho_{\alpha\alpha} = -\Gamma_{\alpha\alpha}\rho_{\alpha\alpha} + \Sigma \Gamma_{\beta\beta}\rho_{\beta\beta} +$$

$$\frac{i}{\hbar} \Sigma\{\mu_{\alpha\beta}\rho_{\beta\alpha} - \rho_{\alpha\beta}\mu_{\beta\alpha}\} E_j e^{i(k_j z - \omega_j t)} \qquad (12)$$

wobei

$$\omega_{\alpha\beta} = \Omega_{\alpha\beta} - i \Gamma_{\alpha\beta} \qquad (13)$$

und

$$\Omega_{\alpha\beta} = \frac{E_\alpha - E_\beta}{\hbar} \qquad (14)$$

die atomaren Eigenfrequenzen sind.

Dieses Gleichungssystem ist i.a. nicht analytisch lösbar und auch eine direkte numerische Lösung /12/, /28/ erweist sich als aufwendig, da bei realistisch gewählten Parametern oft numerische Instabilitäten auftreten.

1.2. Stationäre Störungsrechnung

Der traditionelle Lösungsweg des Gleichungssystems (10)-(12) führt über die stationäre Störungsrechnung /30/. Hierbei wird die Dichtematrix und damit die Polarisation nach Potenzen der Störung, d.h. der elektrischen Feldstärke entwickelt.

$$\rho = \sum_{n=0}^{\infty} \rho^{(n)} \tag{15}$$

Ausgehend von $\rho^{(0)}$, der zeitunabhängigen Dichtematrix des ungestörten Systems, die trivialerweise der Gleichung

$$\dot{\rho}^{(0)} = -\frac{i}{\hbar}\left[H^{\circ}, \rho^{(0)}\right] + R\rho^{(0)} \equiv 0 \tag{16}$$

genügt, werden die höheren Ordnungen iterativ als Lösungen der Gleichung

$$\dot{\rho}^{(n)} = -\frac{i}{\hbar}\left[H^{\circ}, \rho^{(n)}\right] + \frac{iE}{\hbar}\left[\mu, \rho^{(n-1)}\right] + R\rho^{(n)} \tag{17}$$

ermittelt. Summiert man jeweils die linken und rechten Seiten der Gleichungen (16) und (17) über n, so erhält man mit (15) wieder die Ausgangsgleichung (9).

Zur Lösung von (Gl. 17) werden die $\rho_{\alpha\beta}^{(n)}$ als harmonische Funktionen der Feldfrequenzen

$$\rho_{\alpha\beta}^{(n)}(t) = \sum_j \{\rho_{\alpha\beta}^{(n)}\}_j \, e^{-i\omega_j t} \qquad (18)$$

angesetzt mit zeitunabhängigen Amplituden $\{\rho_{\alpha\beta}^{(n)}\}_j$.

Für die Polarisation wird der phänomenologische Ansatz

$$P = \varepsilon_0 N \sum_n \chi^{(n)} E^n \qquad (19)$$

gemacht, durch den die nichtlinearen Suszeptibilitäten $\chi^{(n)}$ definiert werden. Sie ergeben sich durch Koeffizientenvergleich beim Einsetzen der Lösungen von (Gl. 17) in (Gl. 4). Die einzelnen Fourierkomponenten der $\chi^{(n)}$, die verschiedene nichtlineare Prozesse beschreiben, sind von mehreren Autoren /34/ - /37/ berechnet worden. Eine vollständige Darstellung der umfangreichen Ergebnisse würde den Rahmen dieser Arbeit sprengen. Es werden daher nur im folgenden die Suszeptibilitäten angegeben, die zur Diskussion der hier behandelten experimentellen Ergebnisse benötigt werden.

Mit Einführung der Suszeptibilitäten erhalten die Feldgleichungen die Struktur

$$\frac{\partial}{\partial z} E_j = i N \frac{\omega_j}{2c} \sum_{n=0}^{\infty} \chi^{(n)}(\omega_j) \prod_{k=1}^{n} E_k \qquad (20)$$

mit

$$\omega_j = \sum_{k=1}^{n} \omega_k \qquad (21)$$

wobei die zeitliche Änderung der Feldamplitude gegenüber der räumlichen vernachlässigt wird. (Die Näherung der Stationarität wird in 3.1.1. ausführlich diskutiert)

Bei einigen Prozessen benötigt man einen von Null verschiedenen Anfangswert, um eine von Null verschiedene Lösung von (Gl. 20) zu bekommen. Die einem solchen Anfangswert entsprechende Intensität ergibt sich aus spontaner Emission bzw. Quantenrauschen nach Cotter /38/ zu

$$I_n = \frac{\hbar\omega^3 d\omega\, a^2}{16\pi^2 c^2 L^2} \qquad (22)$$

1.3. Kleinsignalnäherung

Bricht man die Störungsrechnung nach einer niedrigen Ordnung ab, so bleiben die Bewegungsgleichungen für die Diagonalelemente der Dichtematrix und damit die Änderungen der atomaren Besetzungen durch das Strahlungsfeld i.a. unberücksichtigt. Dies ist von vornherein nicht einzusehen, kann aber am Beispiel der Frequenzverdreifachung in einem Vierniveausystem, die durch Störungsrechnung bis zur dritten Ordnung beschrieben wird, plausibel gemacht werden. Im ungestörten Zustand seien alle Atome im Ausgangszustand $|1\rangle$ (vgl. Fig. 1a) und es treten keine Kohärenzen auf. Dann ist ρ_{11} das einzige von Null verschiedene Matrixelement. Die erste Ordnung beschreibt die Erzeugung der Kohärenz ρ_{12} durch das Strahlungsfeld E

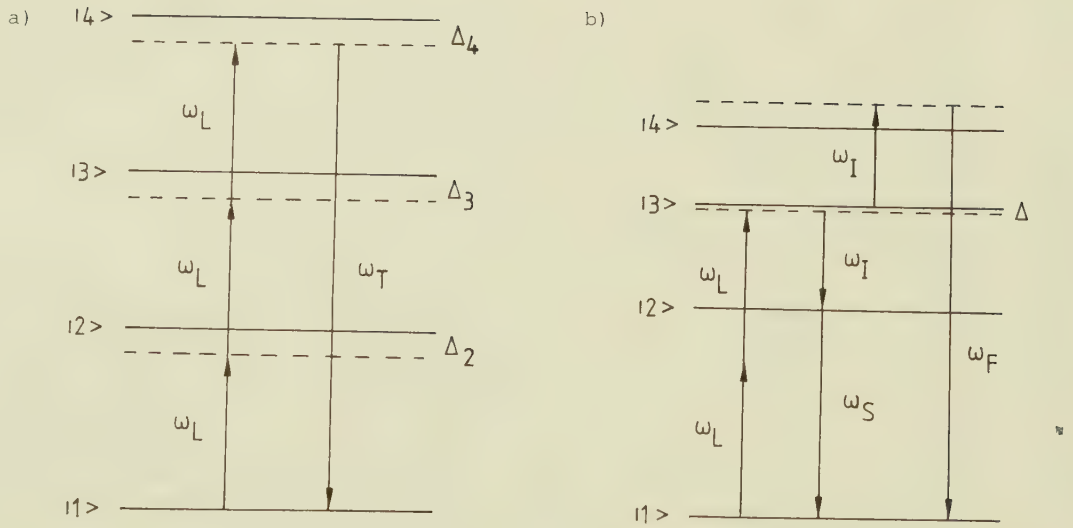

Fig. 1: Nichtlineare optische Prozesse in einem Vierniveausystem. Zur Bezeichung der Niveaus und Felder.

a) Frequenzverdreifachung (allgemein)

b) Zweiphotonenresonante Summenfrequenzmischung $\omega_F = 2\omega_L + \omega_I$ zweier Laserphotonen ω_L mit einem intern erzeugten Idlerphoton ω_I.

$$\rho_{11} \xrightarrow{E} \rho_{12}$$

Analog liefert die zweite Ordnung

$$\rho_{12} \xrightarrow{E} \rho_{13}$$

und die dritte Ordnung

$$\rho_{13} \xrightarrow{E} \rho_{14}$$

Durch ρ_{14} entsteht die Polarisation bei 3ω als Quellterm für das erzeugte Feld. Die Besetzung ρ_{22} ist erst in der zweiten Ordnung von Null verschieden:

$$\rho_{11} \xrightarrow{E} \rho_{12} \xrightarrow{E^*} \rho_{22}$$

und beeinflußt erst in der fünften Ordnung ρ_{14}:

$$\rho_{22} \xrightarrow{E} \rho_{23} \xrightarrow{E} \rho_{24} \xrightarrow{E^*} \rho_{14}$$

Analog erhält man den Einfluß von ρ_{33} in der siebten Ordnung und von ρ_{44} in der neunten Ordnung.

In vielen Fällen, speziell bei kleinen Primärfeldern oder großen Resonanzabweichungen Δ sind diese Vernachlässigungen zulässig. Nimmt man zusätzlich an, daß das atomare Ensemble keine nichtlinearen Rückwirkungen auf die Primärfelder hat

und behandelt die linearen Rückwirkungen phänomenologisch (vgl. 1.5.1.), braucht (Gl. 20) oft nur für eine Fourierkomponente gelöst werden. Diese Kleinsignalnäherung liefert dann analytische Ausdrücke für die erzeugte Intensität, mit denen sich die experimentellen Ergebnisse teilweise gut beschreiben lassen.

1.4. Sättigungsmechanismen

Bei hohen Primärfeldstärken und kleinen Resonanzabweichungen ist die Kleinsignalnäherung nicht mehr gültig. Es treten Sättigungseffekte auf, die z.B. von Cotter /14/ bei der Ramanstreuung behandelt worden sind. Sie sind hauptsächlich auf die Umverteilung der atomaren Besetzungen (atomic depletion) und die Schwächung des Pumpfeldes im nichtlinearen Medium (pump depletion) zurückzuführen.

Eine Möglichkeit, die "atomic depletion" im Rahmen der Störungsrechnung zu berücksichtigen, stellt die Ratengleichungsnäherung dar, die erstmals von Puell /19/ auf die zweiphotonenresonante Frequenzverdreifachung angewandt worden ist. Sie stimmt formal mit den Ansätzen von Ward /13/ und Wang /39/ überein. Hierbei werden Atome in verschiedenen angeregten Zuständen als unterschiedliche Atome mit eigenen konstanten nichtlinearen Suszeptibilitäten behandelt. Die nichtlinearen Suszeptibilitäten werden im Rahmen der Störungsrechnung ermittelt, wobei der jeweilige angeregte Zustand als Ausgangs-

zustand betrachtet wird. Die makroskopischen Suszeptibilitäten erhält man durch Summation über die angeregten Zustände, deren Besetzungen in einem stationären Ratengleichungssystem ermittelt werden.

Bevor dieses Verfahren im Detail dargestellt wird, sollen hier noch weitere Sättigungsmechanismen kurz erwähnt werden. Bei hohen Eingangsintensitäten wird der Brechungsindex des Mediums durch Beiträge der Suszeptibilität dritter Ordnung intensitätsabhängig. Bei den im Experiment vorliegenden räumlichen Intensitätsverteilungen kann es dann zu Selbstfokussierung oder Selbstdefokussierung /15/, /16/ kommen, die beim Ansatz ebener Wellen nicht berücksichtigt werden.

Der dynamische Stark-Effekt äußert sich bei zweiphotonenresonanten Prozessen in zweifacher Weise: durch eine Einphotonen-Stark-Verschiebung /11/, /18/ und durch eine Zweiphotonen-Stark-Aufspaltung /17/ der Niveaus.

Schließlich muß in vielen Fällen Ein- und Mehrphotonenionisation vom Grundzustand sowie von besetzten angeregten Zuständen aus berücksichtigt werden /40/, /41/, /42/. Die Größenordnungen der zuletzt genannten Effekte werden in 3.1.1. diskutiert.

1.5. Anwendung der Störungsrechnung mit Ratengleichungsnäherung auf ein Vierniveausystem

Man betrachte ein Vierniveausystem, wie es in Fig. 1b dargestellt ist. Dipolübergänge seien nur zwischen den Niveaus $|1\rangle\!\rightarrow\!|2\rangle$, $|2\rangle\!\rightarrow\!|3\rangle$, $|3\rangle\!\rightarrow\!|4\rangle$ und $|1\rangle\!\rightarrow\!|4\rangle$ erlaubt. Strahlt man ein Feld der Frequenz ω_L mit $\omega_L \cong \Omega_{31}/2$ ein, so erwartet man neben der Erzeugung eines Feldes bei $3\omega_L$, die hier nur am Rande diskutiert wird, auch Felder bei $\omega_I \cong \Omega_{32}$, $\omega_S = 2\omega_L - \omega_I \cong \Omega_{21}$ und $\omega_F = 2\omega_L + \omega_I$, wobei Δ_2, $\Delta_4 >> \Delta_3$. Die Zweiphotonenresonanzabweichung Δ_3 wird im folgenden kurz mit Δ bezeichnet.

Die wichtigsten linearen und nichtlinearen Prozesse, die hierbei eine Rolle spielen, sollen im folgenden diskutiert werden, wobei betont werden muß, daß sich die Unterscheidung der Prozesse traditionell aus der Störungsrechnung entwickelt hat. In den ursprünglichen Bewegungsgleichungen für die Dichtematrix sind alle Prozesse gekoppelt, erst eine Entwicklung nach Potenzen der Feldstärke macht es möglich, phänomenologisch unterscheidbare Mechanismen einzeln zu betrachten und so ein tieferes Verständnis für die Vorgänge im nichtlinearen Medium zu entwickeln. Als Reihenfolge, in der die Prozesse hier aufgeführt werden, wurden die steigenden Ordnungen der Störungsrechnung gewählt, zum einen aus Gründen der formalen Übersichtlichkeit, zum anderen, da sich das Zusammenspiel der Mechanismen nicht durchgehend als

Kausalkette darstellen läßt.

1.5.1. Prozesse erster Ordnung

Prozesse erster Ordnung sind die linearen Wechselwirkungen zwischen Strahlung und Materie, (Einphotonen-)Absorption, stimulierte Emission und Dispersion. Sie werden beschrieben durch die Suszeptibilität erster Ordnung, die sich aus der Störungsrechnung zu

$$\chi^{(1)}(\omega_i) = \frac{1}{\varepsilon_0 \hbar} \sum_{\alpha,\beta} \frac{\mu_{\alpha\beta}\mu_{\beta\alpha}(\rho_{\alpha\alpha}-\rho_{\beta\beta})}{\Omega_{\beta\alpha}-\omega_i-i\Gamma_{\beta\alpha}} \qquad (23)$$

ergibt. Durch die Überhöhung einzelner Summanden bei der Koinzidenz der Feldfrequenzen mit atomaren Frequenzen lassen sich bei der Summation nichtresonante gegenüber resonanten oder nah-resonanten Termen vernachlässigen, wobei aber hier Realteile und Imaginärteile der Suszeptibilitäten getrennt betrachtet werden.

Die eingestrahlte Frequenz ω_L liegt weit von allen Einphotonenresonanzen entfernt. Der Imaginärteil der linearen Suszeptibilität, der Absorption bzw. stimulierte Emission beschreibt, kann daher völlig vernachlässigt werden. Zur Berechnung des Realteils, der Dispersion beschreibt, braucht bei hinreichend kleinen Eingangsintensitäten, solange der atomare Grundzustand nahezu völlig besetzt bleibt, nur der Einphotonenübergang

$|1\rangle\rightarrow|2\rangle$ berücksichtigt werden, bei höheren Eingangsintensitäten müssen die Dipolübergänge $|2\rangle\rightarrow|3\rangle$ und $|3\rangle\rightarrow|4\rangle$ in die Summation eingehen, der Übergang $|1\rangle\rightarrow|4\rangle$ ist i.a. gegenüber $|1\rangle\rightarrow|2\rangle$ aufgrund der größeren Einphotonen-Resonanzabweichung und des kleineren Dipolmatrixelements vernachlässigbar.

Die Idlerfrequenz ω_I liegt exakt resonant zum Übergang $|2\rangle\rightarrow|3\rangle$. Zur Berechnung des Imaginärteils der Suszeptibilität braucht daher nur dieser Übergang berücksichtigt zu werden. Da i.a. eine Besetzungsinversion erreicht wird, beschreibt dieser Term die Erzeugung der Idlerkomponente durch stimulierte Emission. Zum Realteil der Suszeptibilität tragen die Übergänge $|1\rangle\rightarrow|2\rangle$ und bei höheren Eingangsintensitäten auch $|3\rangle\rightarrow|4\rangle$ bei, Beiträge vom Übergang $|2\rangle\rightarrow|3\rangle$ verschwinden, da der entsprechende Summand rein imaginär ist.

Die Signalfrequenz ω_S liegt nah-resonant zum Übergang $|1\rangle\rightarrow|2\rangle$, entsprechend der Abweichung Δ der eingestrahlten Frequenz von der Zweiphotonenresonanz. Im Imaginärteil der Suszeptibilität braucht nur dieser Übergang berücksichtigt zu werden. Der Term beschreibt die Reabsorption der erzeugten Signalkomponente, da der Grundzustand i.a. stärker besetzt ist als die angeregten Zustände. Zum Realteil der Suszeptibilität tragen je nach Resonanzabweichung und Intensität der eingestrahlten Komponente die einzelnen Dipolübergänge unterschiedlich bei.

Die Summenfrequenz ω_F liegt im weiten Flügel der Resonanz $|1\rangle\rightarrow|4\rangle$. Der Imaginärteil der Suszeptibilität kann völlig vernachlässigt werden, zur Berechnung des Realteils wird man wegen der Einphotonenresonanzabweichungen i.a. nur die Übergänge $|1\rangle\rightarrow|2\rangle$ und $|1\rangle\rightarrow|4\rangle$ berücksichtigen.

Im Experiment wird dem nichtlinearen Medium, dem Metalldampf, beschrieben durch das Vierniveausystem, oft noch ein Buffergas beigemischt. Während die nichtlinearen Eigenschaften dieses Buffergases meist vernachlässigt werden können, müssen die linearen Effekte, speziell die Dispersion, durch entsprechende Suszeptibilitäten in den Wellengleichungen berücksichtigt werden. Die Berechnung solcher Suszeptibilitäten aus atomaren Daten ist sehr aufwendig. Es liegen aber meist aus Dispersionsmessungen gewonnene semiempirische Formeln für den Brechungsindex vor, aus denen sich die Suszeptibilitäten berechnen lassen.

Die Imaginärteile der linearen Suszeptibilitäten gehen nicht nur in die Wellengleichungen (20) ein, sie dienen auch zur Berechnung der jeweiligen Absorptionskoeffizienten im Ratengleichungssystem. Ausgehend von der Wellengleichung

$$\frac{\partial}{\partial z} E_j = \frac{i N \omega_j}{2c} \chi^{(1)}(\omega_j) E_j \qquad (24)$$

erhält man durch Bildung der konjugiert komplexen Gleichung unter Berücksichtigung von (Gl. 3)

$$\frac{\partial}{\partial z} I_j = - \frac{N \omega_j}{c} \operatorname{Im} \chi^{(1)}(\omega_j) I_j \qquad (25)$$

und mit

$$\frac{\partial}{\partial z} I_j = N \hbar \omega_j \dot{\rho}_{\alpha\alpha} \qquad (26)$$

$$\dot{\rho}_{\alpha\alpha} = - \frac{1}{\hbar c} \operatorname{Im} \chi^{(1)}(\omega_j) I_j =$$

$$- \frac{\varepsilon_0}{2\hbar} \operatorname{Im} \chi^{(1)}(\omega_j) |E_j|^2 = -\dot{\rho}_{\beta\beta} \qquad (27)$$

Die Realteile der linearen Suszeptibilitäten, die die Dispersionseigenschaften des nichtlinearen Mediums beschreiben, bewirken ortsabhängige Oszillationen in den Feldstärken, in denen sich die frequenzabhängige Phasenverschiebung der Wellen gegenüber der Ausbreitung im Vakuum wiederspiegelt. Bei nichtlinearen Kopplungsprozessen, wo mehrere Frequenzen beteiligt sind, die unterschiedliche Dispersion erfahren, resultieren hieraus i.a. ortsabhängige Oszillationen in der erzeugten Intensität.

Die dispersiven Terme in den Wellengleichungen sind bei einer numerischen Integration in den meisten Fällen problematisch.

Bei einer hohen Teilchendichte ($N = 10^{17} cm^{-3}$) und einer kleinen Abweichung ($\Delta\omega = 10^{11} Hz$) einer Feldfrequenz von einer starken Einphotonenresonanz ($\mu = 3 \times 10^{-27} Ccm$) kann $N \cdot Re\chi^{(1)}$ von der Größenordnung 1 sein, d.h. die Oszillationsperiode in der Feldstärke liegt in der Größenordnung der Wellenlänge. Die kleinen Schrittweiten, die dann bei der Integration benötigt werden, führen i.a. zu außerordentlich langen Rechenzeiten.

Zur Behandlung der dispersiven Effekte wird daher traditionell /30/ ein mathematisch äquivalenter gewählt, bei dem der Einfluß der Realteile der linearen Suszeptibilitäten bereits im Ansatz der Wellenvektoren der einzelnen Fourierkomponenten berücksichtigt werden. Mit

$$k_j = \frac{n_j \omega_j}{c} \tag{28}$$

und

$$n_j - 1 = \frac{N Re\chi^{(1)}(\omega_j)}{2} \tag{29}$$

erhält man Wellengleichungen der Struktur

$$\frac{\partial}{\partial z} E_j = i \frac{N\omega_j}{2c} \sum_{n=2}^{\infty} \chi^{(n)}(\omega_j) \, e^{i\Delta k^{(n)} z} \prod_{l=1}^{n} E_l -$$

$$\frac{N\omega_j}{2c} \, Im \, \chi^{(1)}(\omega_j) \, E_j \tag{29}$$

unter der Voraussetzung ortsunabhängiger Brechungsindices. Hierbei ist

$$\Delta k = k_j - \sum_{l=1}^{n} k_l \qquad (30)$$

die Phasenfehlanpassung. Es zeigt sich, daß bei $\Delta k = 0$ maximale Konversion erzielt wird. Dies ist phänomenologisch dadurch zu erklären, daß bei $\Delta k = 0$ die Impulserhaltung beim Umwandlungsprozess der einzelnen Photonen erfüllt ist.

1.5.2. Prozesse zweiter Ordnung

Obwohl Prozesse gerader Ordnung in isotropen Medien aus Symmetriegründen verboten sind, wurden Effekte zweiter Ordnung, speziell Frequenzverdopplung, von verschiedenen Autoren /43/, /44/ und auch im Rahmen der vorliegenden Arbeit /23/ an Metalldämpfen beobachtet. Mögliche Gründe für dieses Phänomen wurden von Bethune /45/ im Detail diskutiert. Systematische Untersuchungen zur Frequenzverdopplung wurden in der vorliegenden Arbeit nicht durchgeführt. Eine eindeutige Erklärung für ihr Auftreten unter den hier gewählten experimentellen Bedingungen kann daher nicht gegeben werden. Denkbar wäre z.B., daß die Isotropie des Mediums durch Inhomogenitäten im eingestrahlten Feld zerstört wird oder daß es sich bei der Frequenzverdopplung hier um die Kopplung zweier eingestrahlter Photonen mit einem statischen Feld, also um einen Prozess dritter Ordnung handelt.

1.5.3. Prozesse dritter Ordnung

Prozesse dritter Ordnung, die im folgenden angesprochen werden, sind Zweiphotonenabsorption, Intensitätsabhängigkeit des Brechungsindex (Kerr-Effekt), Frequenzverdreifachung, parametrische Vierwellenkopplung sowie Dreiphotonen-Summenfrequenzmischung. Andere Effekte, wie z.B. stimulierte Ramanstreuung, sind bei der Wahl der Feldfrequenzen innerhalb des Vierniveausystems von geringerer Bedeutung.

Die Zweiphotonenabsorption ist das Analogon zur Einphotonenabsorption in der dritten Ordnung. Sie ist ein Einstufenprozess, bei dem intermediäre Niveaus nicht besetzt werden, und wird beschrieben durch den Imaginärteil einer Suszeptibilität dritter Ordnung $\chi^{(3)}(\omega_j,\omega_j,-\omega_j)$. Für die Frequenzabhängigkeit der Suszeptibilität wird hier die Nomenklatur von Ducuing /37/ verwendet. Die Suszeptibilität läßt sich zu

$$\chi^{(3)}(\omega_j,\omega_j,-\omega_j) = \frac{2}{3\cdot\varepsilon\hbar^3} \sum_{\alpha,\beta,\gamma} \frac{\mu_{\alpha\beta}^2 \mu_{\beta\gamma}^2}{(\Omega_{\beta\alpha}-\omega_j)^2} \cdot \frac{\rho_{\alpha\alpha}-\rho_{\gamma\gamma}}{\Omega_{\gamma\alpha}-2\omega_j+i\Gamma_{\alpha\gamma}} \qquad (31)$$

berechnen.

Im betrachteten Vierniveausystem ist nur die Zweiphotonenabsorption bei der eingestrahlten Frequenz ω_L, verbunden mit dem Übergang zwischen den Niveaus $|1\rangle\!\rightarrow\!|3\rangle$ mit $|2\rangle$ als intermediärem Niveau von Bedeutung. Analog zu den Betrachtungen zu den linearen Suszeptibilitäten läßt sich daher die Summation vereinfachen zu

$$\chi^{(3)}(\omega_L,\omega_L,-\omega_L) = \frac{2}{3\varepsilon_0\hbar^3}\,\frac{(\rho_{11}-\rho_{33})\mu_{12}^2\,\mu_{23}^2}{(\Omega_{21}-\omega_L)^2(\Omega_{31}-2\omega_L-i\Gamma_{31})} \qquad (32)$$

Diese Suszeptibilität wird im folgenden kurz mit $\chi^{(3)}(\omega_L)$ bezeichnet. Die Rate für Zweiphotonenabsorption läßt sich analog zu (Gl. 24 - 27) berechnen:

$$\dot{\rho}_{11} = -\dot{\rho}_{33} = -\frac{\varepsilon_0}{4\hbar}\,\mathrm{Im}\,\chi^{(3)}(\omega_L)\,|E_L|^4 \qquad (33)$$

Der Realteil der Suszeptibilität $\chi^{(3)}(\omega_L)$ liefert einen Beitrag zum intensitätsabhängigen Brechungsindex (Kerr-Effekt). In Analogie zum linearen Brechungsindex, der durch den Realteil der Suszeptibilität erster Ordnung beschrieben wird, erhält man den Korrekturterm

$$\delta n^{(3)}(\omega_L) = N\,\frac{\mathrm{Re}\,\chi^{(3)}(\omega_L)\;|E_L|^2}{2} \qquad (34)$$

Obwohl in der vorliegenden Arbeit keine quantitativen Untersuchungen zur Frequenzverdreifachung $\omega_T = 3\omega_L$ durchgeführt worden sind, soll der Vollständigkeit halber die entsprechende

Suszeptibilität $\chi^{(3)}(\omega_j,\omega_j,\omega_j)$ unter Vernachlässigung nichtresonanter Terme im gewählten Vierniveausystem angegeben werden.

$$\chi^{(3)}(\omega_T) = \frac{6}{\varepsilon_0 \hbar^3} \frac{\mu_{12}\mu_{23}\mu_{34}\mu_{41}\,(\rho_{11}-\rho_{33})}{(\Omega_{21}-\omega_L)\,(2\omega_L-\Omega_{31}-i\Gamma_{31})(\Omega_{41}-\omega_T)} \qquad (35)$$

Beim parametrischen Vierwellenkopplungsprozess werden zwei Photonen des Primärlichtfeldes bei ω_L in ein Signal- und ein Idlerphoton (ω_S, ω_I) umgewandelt mit $2\omega_L = \omega_S + \omega_I$, wobei das Verhältnis ω_S/ω_I prinzipiell alle Werte annehmen kann, so daß die erzeugte Strahlung breitbandig über das Frequenzintervall $0 < \omega_S, \omega_I < 2\omega_L$ verteilt ist.

Die Erzeugung schmalbandiger Strahlung wird auf verschiedenen Wegen dadurch erreicht, daß die Effizienz des Prozesses bei bestimmten Frequenzen um Größenordnungen gegenüber dem Untergrund erhöht wird:

- Der Prozess wird durch Überhöhung der Suszeptibilität in der Nähe von Einphotonenresonanzen begünstigt.
- Die parametrische Vierwellenkopplung unterliegt der Phasenanpassungsbedingung, so daß der Prozess speziell an Nullstellen der Phasenfehlanpassung Δk (vgl. Gl. 30) effizient wird.
- Da für diesen Prozess ein "erstes Photon" notwendig ist, das normalerweise aus dem Rauschen geliefert wird (vgl. Gl. 22), kann durch Einstrahlung eines zusätzlichen schwachen Feldes $E_I << E_L$ bei einem festen ω_I Strahlung

bei $\omega_S = 2\omega_L - \omega_I$ erzeugt werden. Eine klare begriffliche Abgrenzung dieses parametrischen Prozesses zur Differenzfrequenzerzeugung ist dann nicht mehr möglich. Traditionell ergibt sich der Unterschied aus der Kleinsignalnäherung, wo im Fall der Differenzfrequenzerzeugung eine Rückwirkung des Kopplungsprozesses auf das Feld bei ω_I vernachlässigt wird, während beim parametrischen Prozess die Felder bei ω_I und ω_S formal gleich behandelt werden.

Bei der Diskussion der spektralen Verteilung von ω_S und ω_I im hier betrachteten Fall spielen alle drei erwähnten Punkte eine Rolle. Das intermediäre Niveau $|2\rangle$ bewirkt eine Resonanzüberhöhung der Suszeptibilität, sodaß mit der Erzeugung von kohärenter Strahlung bei $\omega_I \cong \Omega_{32}$ und $\omega_S \cong \Omega_{21}$ zu rechnen ist.

In der Umgebung der Resonanz Ω_{21} variiert der Brechungsindex des Mediums so stark, daß es über einen weiten Bereich experimenteller Parameter (Fremdgasteilchendichte, Resonanzabweichung des eingestrahlten Feldes) eine Frequenzposition in nahen Flügel dieser Resonanz gibt, wo die Phasenanpassungsbedingung erfüllt ist. Schließlich kann der parametrische Prozess durch stimulierte Emission auf dem Übergang $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$ gezündet werden.

Bei einer Variation der Resonanzabweichung des eingestrahlten Feldes ergeben sich hieraus unterschiedliche Forderungen

für das Verhalten der erzeugten Frequenzen. Die Phasenanpassungsbedingung lässt eine festfrequente Signalkomponente erwarten, die aufgrund der Energieerhaltung $2\omega_L = \omega_S + \omega_I$ mit einer frequenzvariablen Idlerkomponente verbunden ist. Die stimulierte Emission als Zündmechanismus führt zu einer festfrequenten Idlerkomponente, d.h. einer frequenzvariablen Signalkomponente.

Für das erzeugte Spektrum ergeben sich somit mehrere Möglichkeiten:
Einer der beiden Mechanismen kann dominieren und das Frequenzverhalten bestimmen oder beide Mechanismen können zu einer vergleichbaren Erhöhung der Effizienz führen, was bedeuten würde, daß das erzeugte Spektrum jeweils in eine festfrequente und eine frequenzvariable Komponente aufspalten würde. Die experimentellen Untersuchungen in der vorliegenden Arbeit ergeben, daß die Idlerfrequenz aus einer einzigen, festfrequenten Komponente besteht. Die Diskrepanz zu den Ergebnissen von Reif /7/ und Schöne /22/ in diesem Punkt wird in 3.3.2. diskutiert.

Bei diesem Frequenzverhalten erhält man für die Suszeptibilitäten im Vierniveausystem unter Vernachlässigung nichtresonanter Terme

$$\chi^{(3)}(\omega_I) = \frac{1}{3\hbar^3\varepsilon_0} \quad \frac{\mu_{12}^2 \quad \mu_{23}^2}{i\Gamma_{32}(\omega_L - \Omega_{21})} \quad \times$$

$$\left\{ \frac{\rho_{11}-\rho_{22}}{\Omega_{21}-\omega_S+i\Gamma_{21}} + \frac{\rho_{11}-\rho_{33}}{2\omega_L-\Omega_{31}+i\Gamma_{31}} \right\} \qquad (36)$$

und

$$\chi^{(3)}(\omega_S) = \frac{1}{3\hbar^3\varepsilon_0} \quad \frac{\mu_{12}^2 \quad \mu_{23}^2}{(\omega_S-\Omega_{21}+i\Gamma_{21})(\omega_L-\Omega_{21})} \quad \times$$

$$\left\{ \frac{\rho_{33}-\rho_{11}}{2\omega_L-\Omega_{31}+i\Gamma_{31}} + \frac{\rho_{33}-\rho_{22}}{i\Gamma_{23}} \right\} \qquad (37)$$

Die Realteile der Suszeptibilitäten bewirken in den Wellengleichungen eine Phasenverschiebung der erzeugten Wellen und tragen so zum intensitätsabhängigen Brechungsindex bei.

Das Schwergewicht der vorliegenden Arbeit liegt auf der Dreiphotonen- Summenfrequenzmischung $\omega_F = 2\omega_L + \omega_I$. Die zugehörige Suszeptibilität lässt sich unter Vernachlässigung nichtresonanter Terme zu

$$\chi^{(3)}(\omega_F) = \frac{1}{3\hbar^3\varepsilon_0} \frac{\mu_{12}\,\mu_{23}\,\mu_{34}\,\mu_{41}\,(\rho_{11}-\rho_{33})}{(\Omega_{21}-\omega_L)(2\omega_L-\Omega_{31}-i\Gamma_{31})(\Omega_{41}-\omega_F)} \qquad (38)$$

berechnen. Auch hier trägt der Realteil zum intensitätsabhängigen Brechungsindex bei.

1.5.4. Prozesse höherer Ordnung

Prozesse höherer als dritter Ordnung werden im Rahmen dieser Arbeit vernachlässigt. Zur Begründung der Gültigkeit dieser Näherung wird der Einfluß der beiden dominierenden Terme fünfter Ordnung in 3.1.1. abgeschätzt. Es handelt sich hierbei um die Hyperramanstreuung, bei der in einem Einstufenprozess zwei eingestrahlte Photonen ω_L absorbiert und ein Photon bei ω_I emittiert werden. Der Prozess ist verbunden mit einem Übergang des Atoms vom Grundzustand |1> in den angeregten Zustand |2>. Die zugehörige Suszeptibilität lässt sich in KLeinsignalnäherung (unter der Annahme, daß nur der atomare Grundzustand besetzt ist) zu

$$\chi^{(5)}(\omega_I) = \frac{1}{30\hbar^5\varepsilon_0} \frac{\mu_{12}^2\,\mu_{23}^4}{(\Omega_{21}-\omega_L)^2\{(\Omega_{31}-2\omega_L)^2+\Gamma_{31}^2\}} \cdot$$

$$\frac{1}{(\Omega_{21}-\omega_S+i\Gamma_{21})} \qquad (39)$$

berechnen.

Der zweite betrachtete Prozess ist die zweiphotonenresonante Dreiphotonenionisation, das Analogon zur Ein- bzw. Zweiphotonenabsorption in der fünften Ordnung. Dieser Prozess läßt sich im betrachteten Vierniveausystem nicht beschreiben, der Endzustand ist ein Kontinuumszustand c oberhalb der Ionisationsgrenze. Die zugehörige Suszeptibilität ist

$$\chi^{(5)}(\omega_L) = \frac{3}{10\hbar^5\varepsilon_0} \frac{\mu_{12}^2 \mu_{23}^2 \mu_{3c}^2}{(\Omega_{21}-\omega_L)^2\{(\Omega_{31}-2\omega_L)+\Gamma_{31}^2\}} \times$$

$$\frac{1}{\Omega_{c1}-3\omega_L-i\Gamma_{c1}} \qquad (40)$$

Für eine Abschätzung der Größenordnung des Effekts kann man das frei-gebunden Matrixelement μ_{3c} nach Heitler /46/ zu

$$\mu_{3c} = e\left(\frac{\hbar}{2m\,\omega_L}\right)^{1/2} \qquad (41)$$

berechnen. Annahmen über die Zustandsdichte Γ_{c1} im Kontinuum erübrigen sich bei einem Vergleich mit Einphotonenionisationsquerschnitten, von denen vielfach experimentelle Werte vorliegen.

1.5.5. Auswirkungen von Besetzungsänderungen, Linienbreiten und Linienverschiebungen in den Suszeptibilitäten

In sämtlichen o.a. Suszeptibilitäten gehen Differenzen der Besetzungen innerhalb des Vierniveausystems ein. Der in 1.4. schon erwähnte Effekt der "atomic depletion", d.h. der Reduktion der Erzeugungsrate bei Umverteilung der atomaren Besetzungen, wird daher auch formal einsichtig. Es ist zu bemerken, daß bei Gleichbesetzung aller Niveaus die Suszeptibilitäten verschwinden und daher keine Strahlung im nichtlinearen Medium erzeugt werden kann.

Den o.a. Suszeptibilitäten liegt die Annahme monochromatischer Felder und homogen verbreiteter atomarer Übergänge zugrunde. I.a. ist man jedoch im Experiment mit einer endlichen Laserbandbreite (größer als die Fourier-Begrenzung) und einem inhomogenen Beitrag zu den atomaren Linienbreiten (Dopplereffekt) konfrontiert. Der Einfluß dieser Linienbreiten wurde u.a. von Stappaerts /47/ und Leubner /48/ untersucht. In 3.1.1. wird die hier gewählte Behandlung der Linienbreiteneffekte erläutert und die Gültigkeit der dabei gemachten Näherungen diskutiert.

Bei hohen Eingangsfeldstärken kommt es zu einer Verschiebung bzw. Aufspaltung der atomaren Niveaus durch den dynamischen Stark-Effekt. Die Einphotonen-Stark-Verschiebung der Niveaus $|1\rangle$ und $|3\rangle$ berechnet sich nach Grishkowski /11/ zu

$$\Delta E_1 = \Delta E_3 = -\frac{1}{2}\left(\frac{\mu_{12}^2 E_L^2}{\hbar(\Omega_{21}-\omega_L)} + \frac{\mu_{23}^2 E_L^2}{\hbar(\Omega_{21}-\omega_L)}\right) \qquad (42)$$

Die Zweiphotonen-Stark-Aufspaltung wurde im Detail von Elgin /17/ behandelt. Bei exakter Abstimmung des Primärfeldes auf die Zweiphotonenresonanz zeigt sich, daß die Aufspaltung gleich der Zweiphotonen-Rabi-Frequenz ist. Wegen des von Elgin gewählten Maßsystems wird zur Berechnung der Aufspaltung auf Grishkowski /11/ verwiesen.

$$\delta = \frac{1}{\hbar^2}\,\frac{\mu_{12}\,\mu_{23}\,E_L^2}{\Omega_{21}-\omega_L} \qquad (43)$$

Die Größenordnung dieser Effekte wird in 3.1.1. diskutiert.

1.5.6. Wellengleichungen und Ratengleichungen

Zur Berechnung der erzeugten Feldstärken werden die o.a. Suszeptibilitäten in die Wellengleichungen und Ratengleichungen eingesetzt. Man erhält:

$$\frac{\partial}{\partial z} E_L = \frac{i\omega_L}{2c}\left\{(N\chi^{(1)}(\omega_L)+\phi(\omega_L))E_L + N\chi^{(3)}(\omega_L)\,E_L^2\,E_L^*\right\} \qquad (44a)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} E_I = \frac{i\omega_I}{2c} \{ (N\chi^{(1)}(\omega_I)+\phi(\omega_I)) E_I + N\chi^{(3)}(\omega_I) E_L^2 E_S^* \} \quad (44b)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} E_S = \frac{i\omega_S}{2c} \{ (N\chi^{(1)}(\omega_S)+\phi(\omega_S)) E_S + N\chi^{(3)}(\omega_S) E_L^2 E_I^* \} \quad (44c)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} E_F = \frac{i\omega_F}{2c} \{ (N\chi^{(1)}(\omega_F)+\phi(\omega_F)) E_F + N\chi^{(3)}(\omega_F) E_L^2 E_I \} \quad (44d)$$

Hierbei sind mit $\phi(\omega_j)$ die makroskopischen linearen Suszeptibilitäten des Fremdgases bezeichnet. Die Ratengleichungen sind

$$\dot{\rho}_{11} = -\alpha_S(\rho_{11}-\rho_{22})|E_S|^2+\alpha_L(\rho_{33}-\rho_{11})|E_L|^4+\rho_{22}\Gamma_{22} \quad (45a)$$

$$\dot{\rho}_{22} = \alpha_S(\rho_{11}-\rho_{22})|E_S|^2+\alpha_I(\rho_{33}-\rho_{22})|E_I|^2 + \rho_{33}\Gamma_{33}-\rho_{22}\Gamma_{22} \quad (45b)$$

$$1 = \rho_{11}+\rho_{22}+\rho_{33} \quad (45c)$$

Hierbei bezeichnen die $\alpha_{I,S}$ Einphotonenabsorptionskoeffizienten, die sich mit (Gl. 27) aus den linearen Suszepti-

bilitäten berechnen lassen, α_L ist der analoge Zweiphotonenabsorptionskoeffizient (vgl. Gl. 33), Γ_{jj} ist die Lebensdauer für spontane Emission des Niveaus $|j\rangle$. Die Ratengleichungen werden im hier gewählten Formalismus stationär, d.h. durch $\dot{\rho}_{jj} = 0$ gelöst. Wie schon in 1.5.1 bemerkt wurde, bereitet eine numerische Integration des hier angegebenen Gleichungssystems durch oszillierende Terme große Schwierigkeiten. Zur Lösung des Gleichungssystems werden daher weitere Näherungen gemacht, die sich teilweise empirisch als sinnvoll erwiesen haben:

- Gleichung (44a) kann entfallen ($\frac{\partial}{\partial z} E_L \equiv 0$), sofern die Zweiphotonenabsorption nicht zu einer merklichen Schwächung des Primärfeldes führt.
- In den Gleichungen (44b,c) werden die Realteile der linearen Suszeptibilitäten, d.h.die Phasenanpassungseffekte erster Ordnung vernachlässigt.
- In Gleichung (44d) werden die Phasenanpassungseffekte erster Ordnung durch den Formalismus (Gl. 28 - 30) behandelt. Phasenanpassungseffekte dritter Ordnung, die sowohl aus der komplexen Amplitude E_I als auch aus der komplexen Suszeptibilität $\chi^{(3)}(\omega_F)$ resultieren, werden vernachlässigt.
- Zur Berechnung der Phasenfehlanpassung Δk in Gleichung (44d) wird eine vollständige Besetzung des atomaren Grundzustandes angenommen.

Mit diesen Näherungen erhält man die Wellengleichungen

$$\frac{\partial}{\partial z} E_I = \frac{N\omega_I}{2c} \left(-\mathrm{Im}\chi^{(1)}(\omega_I)\, E_I + \chi^{(3)}(\omega_I)\, E_L^2\, E_S^*\right) \qquad (46a)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} E_S = \frac{N\omega_S}{2c} \left(-\mathrm{Im}\chi^{(1)}(\omega_S)\, E_S + \chi^{(3)}(\omega_S)\, E_L^2\, E_I^*\right) \qquad (46b)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} E_F = -\frac{N\omega_F}{2c}\, \mathrm{Im}\chi^{(3)}(\omega_F)\, E_L^2\, |E_I| e^{-i\Delta kz} \qquad (46c)$$

Das Gleichungssystem (45/46) erwies sich als gut numerisch integrierbar und geeignet zur Beschreibung der experimentellen Resultate, die in der vorliegenden Arbeit am Cadmium erzielt wurden.

2. Experimentelle Untersuchungen am Barium

Barium ist als Erdalkali-Metall ein Zweielektronensystem mit relativ niedrigen Termenergieen (Ionisationsgrenze bei 42032 cm^{-1} entsprechend 238 nm). Die Terme lassen sich nur näherungsweise im Schema der LS-Kopplung beschreiben /49/, das Interkombinationsverbot ist weitgehend aufgehoben, es treten eine Reihe doppelt angeregter Zustände unterhalb der Ionisationsgrenze auf, verbunden mit starker Konfigurationswechselwirkung.

Von den thermodynamischen Eigenschaften her ist Barium hoch schmelzend (Schmelzpunkt bei 710°C, /50/) und schwer verdampfbar (Dampfdruck ≅ 1 Torr bei 1000°C, vgl. 2.1.2.). Wegen des komplizierten Termschemas und der schwierigen technischen Handhabung sind in der Vergangenheit nur wenige Frequenzmischexperimente am Barium durchgeführt worden /51/, /52/, in denen qualitativ die durch einphotonenresonante Anregung der Barium-Interkombinationslinie initiierten Vierwellenkopplungsprozesse untersucht wurden. Speziell Skinner /52/ konnte die Erzeugung von 50 Linien, teilweise resonant zu Übergängen zwischen angeregten Bariumzuständen, beobachten.

Auch bei zweiphotonenresonanter Anregung ist mit der Erzeugung eines Vielliniespektrums aufgrund der Struktur des Bariumtermschemas zu rechnen. Ein Vergleich quantitativer

experimenteller Ergebnisse mit Modellrechnungen ist aus diesem Grunde auch hier nahezu unmöglich. Barium ist jedoch als nichtlineares Medium dazu geeignet, sich einen qualitativen Überblick über mögliche Vierwellenkopplungsprozesse zu verschaffen und, da drei Zweiphotonenresonanzen im Bereich des problemlosen Laserfarbstoffes Rhodamin 6 G liegen, verschiedene Primärlichtquellen auf ihre Eignung für Frequenzmischexperimente hin zu testen.

2.1. Experimenteller Aufbau

Im Experiment (Fig. 2) wurden verschiedene gaslasergepumpte gepulste Farbstofflaser /G1 - G3/ als Primärlichtquellen verwendet. Sie wurden, abgestimmt auf Zweiphotonenresonanzen, in einen mit Barium gefüllten Heatpipe-Ofen /G4/ fokussiert. Zur Absolutleistungsmessung der im nahen UV (250 - 380 nm) erzeugten kohärenten Strahlung diente eine UV-empfindliche Photodiode /G5/. Die spektrale Auflösung der einzelnen Komponenten sowie der Nachweis der frequenzverdreifachten Strahlung im VUV (190 - 200 nm) erfolgte mit einem Czerny-Turner-Spektrometer /G6/ in Kombination mit einem solar blinden Photomultiplier /G7/. Die Pulse der Detektoren wurden zur Unterdrückung des Untergrundes von einem Integrator mit Zeitfenster /G8/ weiterverarbeitet und die Meßwerte mit einem Kompensographen /G9/ dargestellt (Fig. 2).

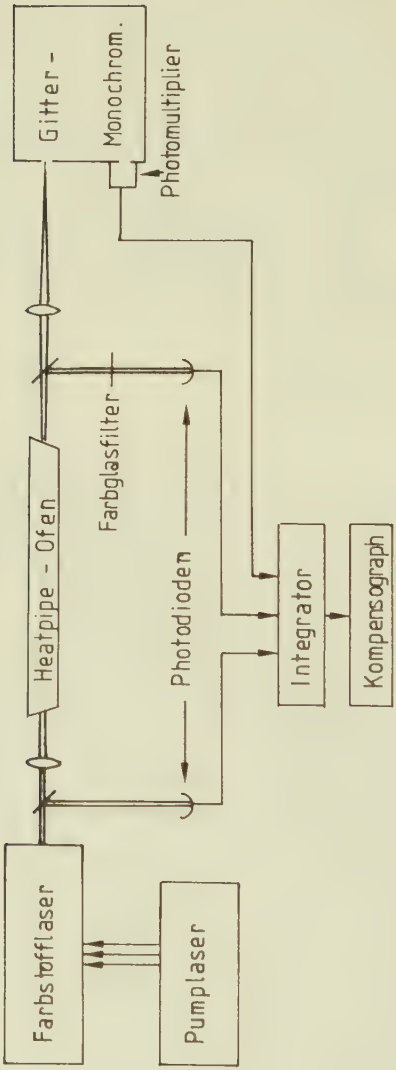

Fig. 2: Experimenteller Aufbau für die Untersuchungen am Barium.

2.1.1. Die Primärlichtquellen

In den ersten Versuchen wurde ein selbstgebauter Farbstofflaser /G1/ verwendet. Er wurde mit einem kommerziellen Stickstofflaser /G10/ gepumpt, mit Rhodamin 6 G in Ethanol (Konzentration 5×10^{-3} Mol/l) betrieben und mit der Kombination eines Interferenzfilters /G11/ und zweier Fabry-Perot-Etalons /G12, G13/ eingeengt (Fig. 3). Die erreichbare Ausgangsleistung von 20 kW wurde mit einer Silizium-Photodiode /G5/ gemessen, auf deren Eichung in 2.1.3. näher eingegangen wird. Die Abstimmung des Interferenzfilters (passive Bandbreite 3,6 nm) erfolgte grob mit einem Gitterspektrometer /G6/, die Feinabstimmung des Interferenzfilters sowie die Abstimmung der beiden Fabry-Perot-Etalons (0,15 bzw. 1 mm Dicke) auf eine Zweiphotonenresonanz wurde iterativ durch Maximierung der erzeugten UV-Leistung durchgeführt.

Ein mit dem Gitterspektrometer aufgenommenes Laserspektrum zeigt Fig. 4. Neben dem zentralen Maximum, dessen Halbwertsbreite unter der Apparatebreite des Spektrometers von 10 pm liegt, treten Seitenbänder im Abstand der freien Spektralbereiche der Etalons (750 pm bzw. 110 pm) auf, da unter den vorgegebenen Resonator- und Pumpbedingungen die aktive Bandbreite des Interferenzfilters nicht optimal an den freien Spektralbereich des 0,15 mm Etalons angepaßt war. Für Vorversuche erwies sich dieses Lasersystem aufgrund der einfachen Justierbarkeit trotz der Seitenbänder im Spektrum als vorteilhaft.

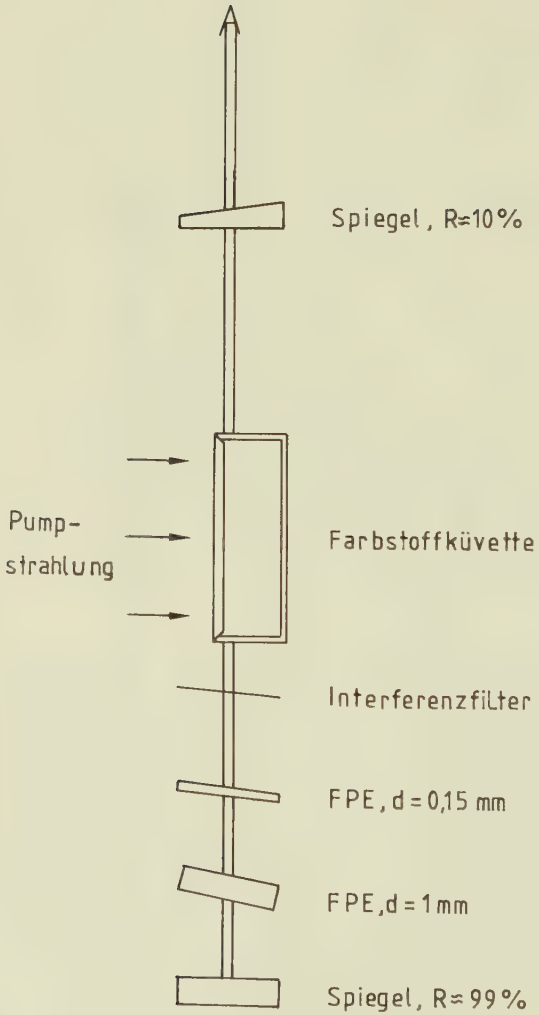

Fig. 3: Resonatoraufbau des Farbstofflasers /G1/.

Fig. 4: Spektrale Verteilung der Laserstrahlung von /G1/.

Für weitere Versuche wurde ein Farbstofflaserresonator /G2/ vom Hänsch-Typ /53/ (Fig. 5) gebaut, bei dem die spektrale Einengung mit einem holographischen Gitter /G14/ in Littrow-Anordnung erfolgte. Zur weiteren Reduktion der Bandbreite wurde das Gitter mit einem Teleskop /G15/ ausgeleuchtet und ein Fabry-Perot-Etalon /G13/ zwischen Teleskop und Gitter eingesetzt. Bei gleichem Pumplaser und gleichem Farbstoff waren die erzielte Ausgangsleistung und Bandbreite mit denen vom Farbstofflaser /G1/ vergleichbar, im Laserspektrum traten aber bei sorgfältiger Justierung keine Seitenbänder auf. Zur Kontrolle der Grobeinengung mit Gitter und Teleskop wurde dabei das Intracavity-Etalon zunächst außerhalb des Resonators als Interferometer eingesetzt und die Justierung des Resonators auf minimale Bandbreite visuell über den Kontrast des Ringsystems optimiert.

Zur Untersuchung von Sättigungseffekten erwiesen sich die erreichbaren Laserleistungen als zu schwach. Es wurde daher ein kommerzielles Farbstofflaser Oszillator-Nachverstärker-System vom Hänsch-Typ /G3/ eingesetzt, das von einem XeCl-Excimerlaser /G16/ gepumpt, Leistungen bis 2 MW (Messung kalorimetrisch /G25/) bei einer Pulsdauer von 6 ns erzielte. Die Farbstoffkonzentration wurde entsprechend den Herstellerempfehlungen für Rhodamin 6 G im Resonator zu $2{,}5 \times 10^{-3}$ Mol/l und im Nachverstärker zu 1×10^{-3} Mol/l gewählt. Die Bandbreite dieses Lasers war bei Betrieb mit Intracavity-Etalon vergleichbar mit der von Farbstofflaser /G2/.

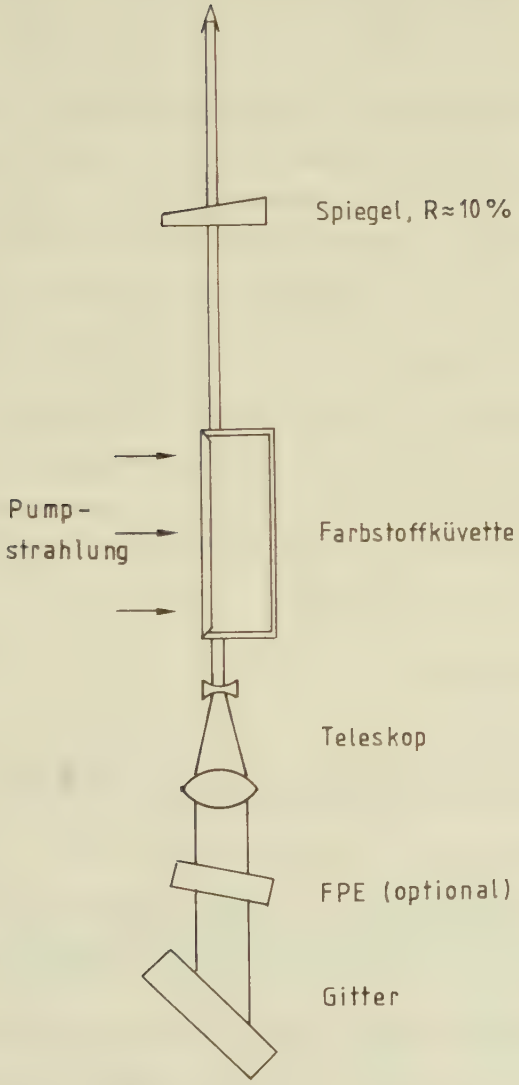

Fig. 5: Resonatoraufbau des Farbstofflasers /G2/.

Die Farbstofflaserstrahlung wurde in die Mitte der Bariumdampfschicht fokussiert. Aufgrund der jeweiligen Resonatorgeometrie und Strahldivergenz erwies sich bei Farbstofflaser /G1/ und /G2/ eine Linse mit 30 cm und bei Farbstofflaser /G3/ eine Linse mit 38 cm Brennweite als optimal. Zur Bestimmung der im Fokus erzielten mittleren Intensität wurde bei Farbstofflaser /G3/ die räumliche Intensitätsverteilung in der Fokalebene bei gleicher Linsenstellung in Luft vermessen. Hierzu wurde ein 15 µm-Spalt /G17/ verwendet, der in Schritten von 10 µm verschoben wurde. Die Messung der transmittierten Leistung erfolgte mit einer Photodiode /G5/. Eine typische Meßkurve zeigt Fig. 6. Die $1/e^2$-Breite ist 0,25 mm. Unter der Annnahme eines Gauß'schen Strahles läßt sich hieraus ein konfokaler Parameter von 30 cm berechnen. Die mittlere Intensität im Fokus ergibt sich bei einer Leistung von 2 MW zu $\leq 10^{10}$ W/cm^2.

2.1.2. Der Heatpipe-Ofen

Zur Erzeugung des Bariumdampfes diente ein Heatpipe-Ofen /G4/ /54/. Der zentrale Teil bestand aus einem 1 m langen Rohr aus hoch hitzebeständigem Edelstahl (Werkstoff Nr. 4841, Durchmesser 50 mm, Wandstärke 5 mm). An beiden Enden waren Aluminium-Hohlkörper für die Wasserkühlung sowie Aluminiumköpfe zur Halterung der Quarzfenster und zum Anschluß an das Vakuumsystem mit O-Ring-Dichtungen angeflanscht. Als Dochtmaterial wurde an die Rohrinnenwand ein Edelstahlmaschendrahtgewebe

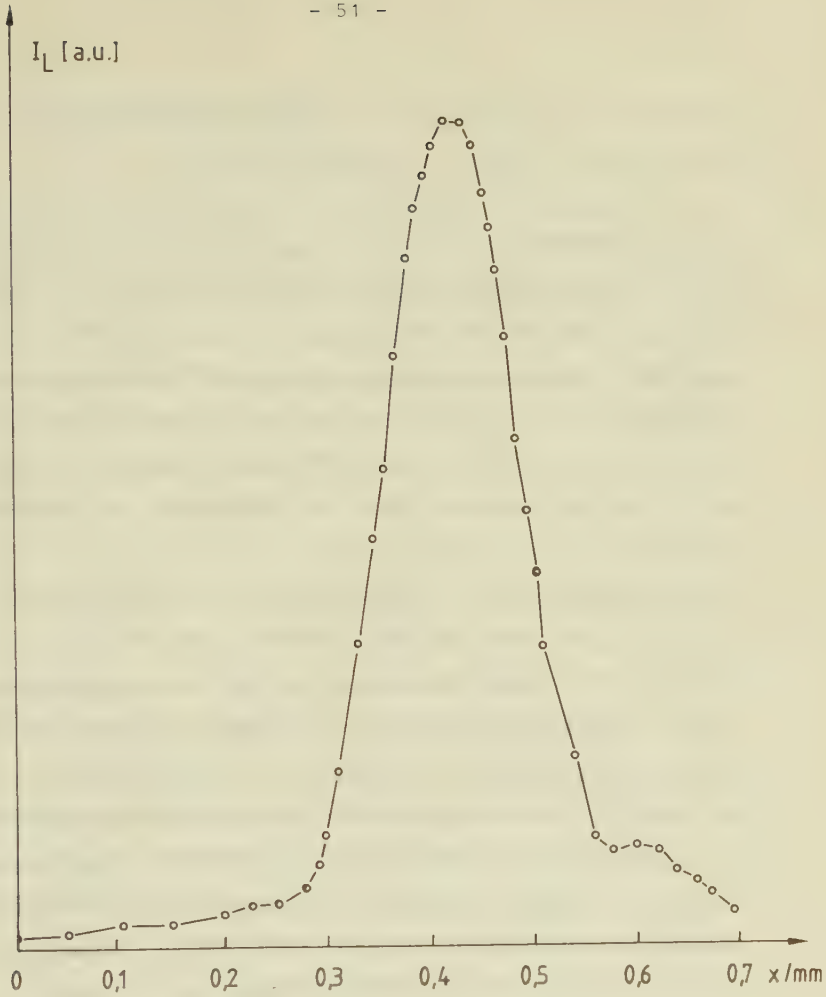

Fig. 6: Räumliche Intensitätsverteilung der Laserstrahlung von /G3/ in der Fokalebene bei Fokussierung mit f = 38 cm.

(Maschenweite 63 µm, Drahtstärke 45 µm) bestehend aus vier untereinander verpunkteten Lagen, angedrückt.

Der Heatpipe-Ofen wurde mit 100 g festem Barium beschickt und mit einer Öldampf-Diffusionspumpe /G18/ auf ≅ 10^{-6} Torr evakuiert. Zum Betrieb wurde ≅ 1 Torr Argon als Buffergas eingefüllt. Die Druckmessung erfolgte mit einem Kompressionsvakuummeter /G19/. Die Heizung des Heatpipe-Ofens erfolgte mit einem Induktionsofen /G20/ (8 kW, 500 kHz) in der Rohrmitte. Zur Bestimmung der Bariumteilchendichte und der Dampfschichtlänge wurden Temperaturprofile mit einer Reihe von NiCr-Ni-Thermoelementen aufgenommen, die in 2 cm Abstand achsial auf die Rohrwand aufgepunktet waren. Das Druckgleichgewicht zum Buffergas bei ≅ 1 Torr stellte sich bei ≅ 1000°C, abweichend von dem in üblichen Tabellenwerken /50/ verzeichneten Dampfdruck von Barium, ein. Die mit dem Heatpipe-Ofen vermessenen Punkte der Dampfdruckkurve lassen sich jedoch in neuere Messungen von Bohdanski und Schins /55/ im Hochdruckbereich sowie von Schulte /56/ im Niederdruckbereich einfügen. Unter Zugrundelegung dieser Dampfdruckmessungen ergab sich die Teilchendichte zu ≅ 10^{16} cm^{-3}. Die Schichtlänge konnte innerhalb gewisser Grenzen über die Heizleistung variiert werden. In den Experimenten wurden typisch Schichtlängen von 20 - 30 cm eingestellt. (Für eine detaillierte Beschreibung zur Konstruktion sowie zu den Betriebsdaten des Heatpipe-Ofens siehe /57/).

2.1.3. Das Nachweissystem

Die gebündelte UV-Strahlung am Ausgang des Heatpipe-Ofens wurde mit einem Gittermonochromator /G6/ mit ≈ 10 pm Apparatebreite spektral zerlegt. Im Spektralbereich 250 - 380 nm diente zusätzlich ein Farbglasfilter /G21/ zur Unterdrückung der kollinearen Primärstrahlung. Als Detektor wurde in diesem Bereich ein Photomultiplier /G22/, im Bereich unterhalb 200 nm ein solar blinder Photomultiplier /G7/ ohne Farbglasfilter verwendet.

Zur Bestimmung der Absolutleistung integriert über den Bereich 250 - 380 nm wurde mit einer Quarzplatte 10 % der Strahlung ausgespiegelt, mit dem oben erwähnten Farbglasfilter von der Primärstrahlung getrennt und mit einer Photodiode /G5/ vermessen. Um Sättigung der Photodiode zu vermeiden wurde die UV-Strahlung mittels Metallreflexionsfiltern /G23/ definiert abgeschwächt. 10 % der Primärstrahlung wurden mit einer weiteren Quarzplatte direkt am Ausgang des Lasers zur Kontrolle der Leistungskonstanz auf eine Photodiode /G24/ gespiegelt.

Die Pulse der Detektoren wurden mit einem Laserphotometer /G8/, bestehend aus Vorverstärker, Integrator mit Zeitfenster sowie elektronischer Mittelung über eine variable Anzahl von Pulsen weiterverarbeitet. Die Ausgabe der Meßwerte erfolgte mit einem Kompensographen /G9/ am Ausgang des Laserphotometers.

Zur Absolutleistungsmessung wurde die Kombination Photodiode/Laserphotometer durch Vergleich mit einer kalorimetrischen Messung des Laserpulses /G25/ geeicht. Die Empfindlichkeit im UV wurde unter Berücksichtigung der Herstellerangaben bezüglich der spektralen Empfindlichkeitskurve bestimmt. Eine separate Eichung des Laserphotometers erfolgte durch Vermessung eines Detektorpulses mit einem schnellen Oszillographen /G26/.

2.2. Diskussion der Ergebnisse

Die Farbstofflaser wurden auf drei verschiedene Zweiphotonenresonanzen von Barium im Emissionsbereich des Laserfarbstoffes Rhodamin 6 G abgestimmt. Im Spektrum der erzeugten kohärenten UV-Strahlung finden sich neben der frequenzverdreifachten und der frequenzverdoppelten Strahlung eine Vielzahl von Komponenten, die größtenteils als Kopplung zweier Laserphotonen mit einem Idlerphoton identifiziert werden konnten. Neben Absolutleistungsmessungen wurden Untersuchungen zur Abhängigkeit der frequenzverdreifachten Komponente sowei der über den Bereich 250 - 380 nm integrierten Intensität von der Resonanzabweichung, Bandbreite und Intensität der Primärstrahlung durchgeführt. Aufgrund des komplizierten Termschemas können die Ergebnisse nur qualitativ interpretiert werden.

2.2.1. Frequenzverdreifachung und Dreiphotonen-Summenfrequenzmischung

Bei Abstimmung des Farbstofflasers /G1/ auf die Zweiphotonenresonanz $6s^2\ ^1S_0 \rightarrow 6s8s\ ^1S_0$ (581,7 nm) wurde Frequenzverdreifachung des Hauptmaximums im Laserspektrum nachgewiesen. Zusätzlich traten Nebenmaxima auf (vgl. Fig. 7), die aufgrund der Frequenzabstände als Dreiphotonen-Summenfrequenzmischung $\omega_{VUV} = 2\omega_{LH} + \omega_{LS}$ zweier Laserphotonen des Hauptmaximums mit einem Laserphoton aus einem Seitenband des Laserspektrums (vgl. Fig. 4) interpretiert werden können.

Die weiteren Versuche zur Frequenzverdreifachung wurden mit Farbstofflaser /G3/ durchgeführt. Bei einer Laserleistung von $\cong$ 2 MW (entspr. 10^{10} W/cm^2) und einer Bandbreite von $\leq$ 10 pm, abgestimmt auf die Zweiphotonenresonanzen $5d7s\ ^1D_2$ (591,6 nm), $6s8s\ ^1S_0$ (581,7 nm) und $6p^2\ ^3P_0$ (579,6 nm), wurde das frequenzverdreifachte Signal gemessen. Aufgrund von Abschätzungen der Spektrometertransmission sowie Herstellerangaben zur Multiplierempfindlichkeit lag die Absolutleistung der Verdreifachten jeweils in der Gegend von 10 mW. Außer der Reabsorption der erzeugten Strahlung, die energetisch oberhalb der Ionisationsgrenze liegt, ist als Hauptgrund für die geringe Konversion anzusehen, daß keine Maßnahmen zur Verbesserung der Phasenanpassung unternommen worden sind. Die im Experiment gewählte Konzeption des ein-

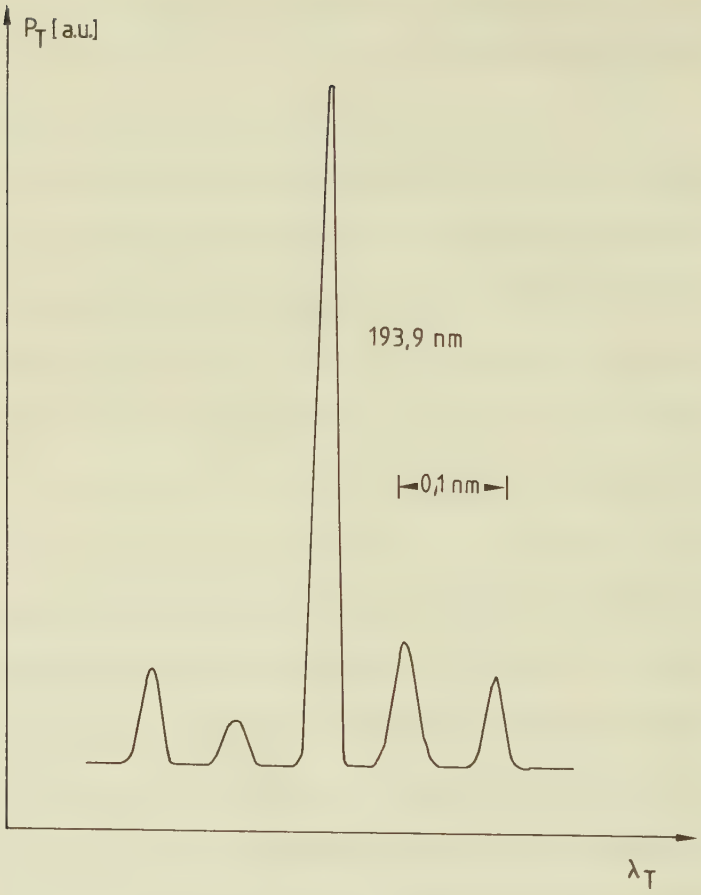

Fig. 7: Frequenzverdreifachung und Summenfrequenzmischung am Barium.

Spektrale Verteilung der erzeugten Strahlung.
Zentrales Maximum: Frequenzverdreifachung $\omega_{TH} = 3\omega_{LH}$ des Hauptbandes der Laserstrahlung ω_{LH} (vgl. Fig. 4).
Nebenmaxima: Summenfrequenzmischung $\omega_{TS} = 2\omega_{LH} + \omega_{LS}$ zweier Photonen des Hauptbandes ω_{LH} mit einem Photon eines Seitenbandes ω_{LS}.

fachen Heatpipe-Ofens gestattet keine homogene Beimischung eines Edelgases zum Metalldampf zur Variation der Brechungsindices. Hierfür wäre ein weit aufwendigerer konzentrischer Heatpipe-Ofen /58/ notwendig gewesen.

Die Reduktion der Konversionsrate durch die Phasenfehlanpassung läßt sich nur grob abschätzen. Unter der Annahme, daß ausschließlich der atomare Grundzustand besetzt ist -bei den experimentellen Pumpintensitäten ist das eine grobe Näherung- läßt sich aus (Gl. 28 - 30) die Phasenfehlanpassung Δk zu 5 - 10 cm^{-1} berechnen. Die hierbei benötigten Dipolmatrixelemente für Barium werden von Miles und Wiese /59/ sowie Schwarz /60/, /61/ angegeben. In der Kleinsignalnäherung unter Annahme ebener Wellen ergibt sich die Reduktion der frequenzverdreifachten Leistung durch Phasenfehlanpassung zu $\mathrm{sinc}^2\,(\Delta kL/2) \approx 10^{-4}$. Unter den gegebenen Umständen ist allerdings weder die Annahme ebener Wellen -der konfokale Parameter ist vergleichbar mit der Schichtlänge- noch die Kleinsignalnäherung streng gültig.

Am Beispiel der Zweiphotonenresonanz $5d7s\,^1D_2$ wurde die Abhängigkeit der Leistung der Frequenzverdreifachung von der Primärleistung untersucht. Eine Meßkurve zeigt Fig. 8. Im Bereich von Primärleistungen zwischen 200 kW und 2 MW, entsprechend Intensitäten zwischen 10^9 und 10^{10} W/cm^2, ist die Leistung der dritten Harmonischen in etwa proportional zum Quadrat der Primärleistung. Von der Kleinsignalnäherung

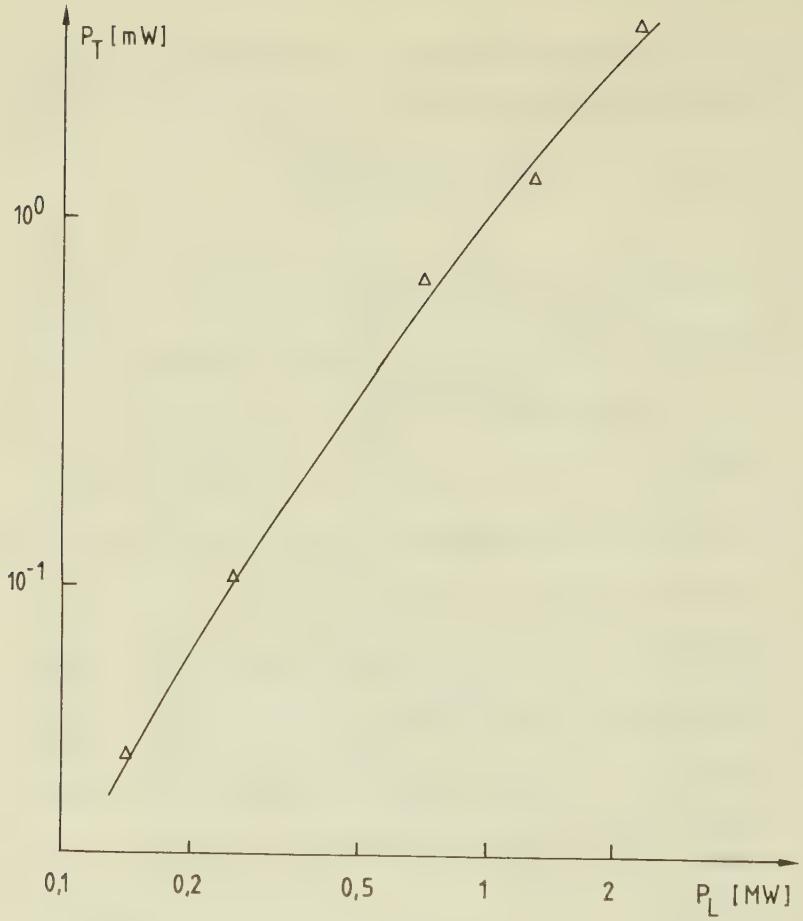

Fig. 8: Frequenzverdreifachung am Barium.

Abhängigkeit der erzeugten Leistung von der Primärleistung.

her wäre eine kubische Abhängigkeit zu erwarten. Das Ergebnis läßt vermuten, daß Sättigungsmechanismen wie speziell die Umverteilungen der atomaren Besetzungen hier wirksam werden.

2.2.2. Kopplung zweier Laserphotonen mit einem Idlerphoton

Die Untersuchungen zur Kopplung zweier Laserphotonen mit einem Idlerphoton[†)] am Barium wurden bei Abstimmung der Primärlichtquellen auf die Zweiphotonenresonanzen $6s8s\,^1S_0$ (581,7 nm) und $5d7s\,^1D_2$ (591,6 nm) durchgeführt. Die Identifizierung der einzelnen Komponenten im Spektralbereich 250 - 380 nm erfolgte im Vorversuch mit Farbstofflaser /G1/. Fig. 9 stellt ein abgekürztes Bariumtermschema dar, in dem die Übergänge, auf denen die Erzeugung von Idlerphotonen über die entsprechenden Kopplungsprodukte nachgewiesen werden konnten, eingezeichnet sind.

Absolutleistungsmessungen der Integralen, im Bereich 250 - 380 nm erzeugten Leistung wurden im Experiment mit Farbstofflaser /G3/ durchgeführt. Bei 2 MW Eingangsleistung ergab sich hierbei bei allen drei Zweiphotonenresonanzen eine Ausgangsleistung von der Größenordnung 1 kW, wobei sich die gemessenen Leistungen $P_{6s8s}:P_{5d7s}:P_{6p^2}$ wie 1:1,5:2,5 verhielten. Mit diesem Laser wurde auch die Abhängigkeit der integralen UV-Leistung von der Laserleistung

---

[†)] zur Bezeichnung 'Idlerphoton' s. 1.5.

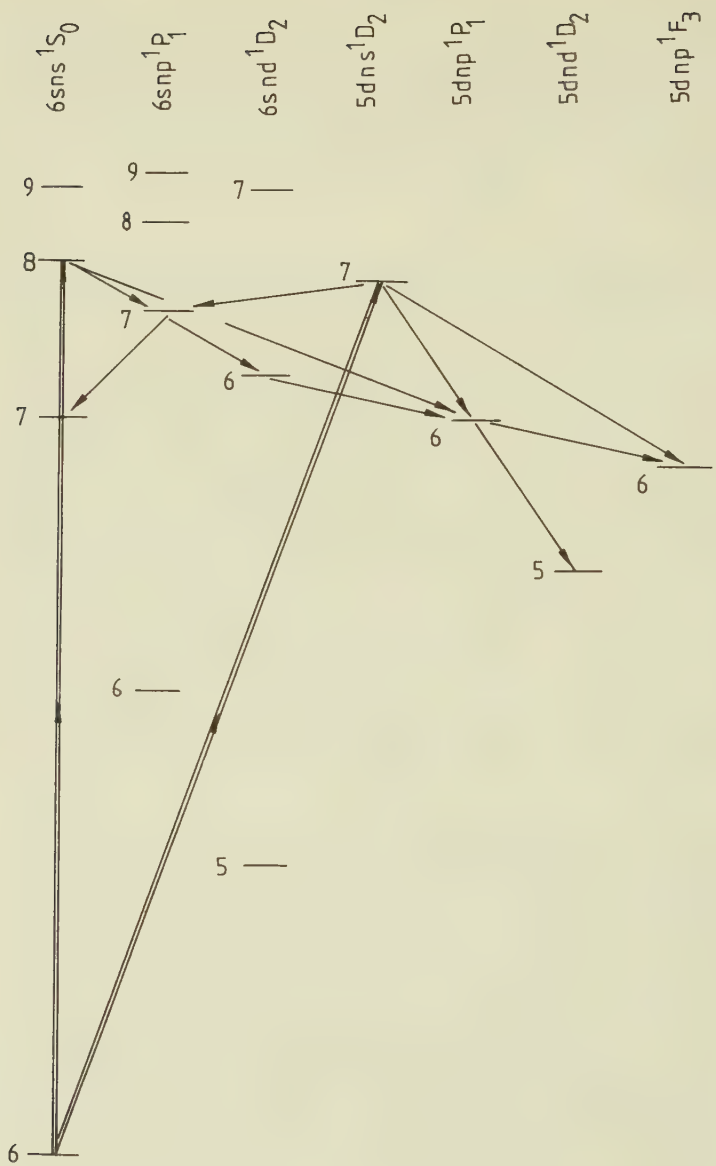

Fig. 9: Abgekürztes Bariumtermschema

Tab. 1:

Summen- und Differenzfrequenzmischung $\omega_F = 2\omega_L \pm \omega_I$ zweier Laserphotonen ω_L mit einem intern erzeugten Idlerphoton ω_I am Barium.

Bei Abstimmung auf die Zweiphotonenresonanz $6s8s\,^1S_0$ erzeugte Komponenten.

λ/nm	Kopplung	Idlerkomponente	rel. Int.	$\Delta k/cm^{-1}$
258,4	$2\omega_L + \omega_{I4}$	ω_{I4}: $6s7p\,^1P_1 \rightarrow 6s7s\,^1S_0$	0,05	5,6
272,6	$2\omega_L + \omega_{I2}$	ω_{I2}: $6s7p\,^1P_1 \rightarrow 6s6d\,^1D_2$	0,02	5,3
276,2	$2\omega_L + \omega_{I1}$	ω_{I1}: $6s8s\,^1S_0 \rightarrow 6s7p\,^1P_1$	0,3	5,3
307,2	$2\omega_L - \omega_{I1}$		0,05	-
307,7	$2\omega_L - \omega_{I1*}$		0,3	0
311,9	$2\omega_L - \omega_{I2}$		1	4,7
322,9	$2\omega_L - \omega_{I3}$	ω_{I3}: $6s6d\,^1D_2 \rightarrow 5d6p\,^1F_3$	0,05	5,2
332,7	$2\omega_L - \omega_{I4}$		0,2	5,3
350,2	$2\omega_L - \omega_{I5}$	ω_{I5}: $6s8s\,^1S_0 \rightarrow 5d6p\,^1P_1$	0,1	-
350,7	$2\omega_L - \omega_{I5*}$		0,5	0

Tab. 2:

Summen- und Differenzfrequenzmischung $\omega_F = 2\omega_L \pm \omega_I$ zweier Laserphotonen ω_L mit einem intern erzeugten Idlerphoton ω_I am Barium.

Bei Abstimmung auf die Zweiphotonenresonanz $5d7s\,^1D_2$ erzeugte Komponenten.

λ/nm	Kopplung	Idlerkomponente	$\Delta k/cm^{-1}$
254,5	$2\omega_L + \omega_{I8}$	ω_{I8}: $5d6p\,^1P_1 \rightarrow 5d^2\,^1D_2$	3,5
256,1	$2\omega_L + \omega_{I7}$	ω_{I7}: $5d7s\,^1D_2 \rightarrow 5d6p\,^1P_1$	4,1
307,2	$2\omega_L - \omega_{I6}$	ω_{I6}: $5d7s\,^1D_2 \rightarrow 6s7p\,^1P_1$	-
(350,2)	$2\omega_L - \omega_{I7}$		-
353,5	$2\omega_L - \omega_{I8}$		3,0
372,9	$2\omega_L - \omega_{I9}$	ω_{I9}: $5d7s\,^1D_2 \rightarrow 5d6p\,^1F_3$	3,8

bei zwei verschiedenen Laserbandbreiten (mit Etalon 5 pm $\hat{=}$ 2,6 $\times 10^{10}$ Hz, ohne Etalon 30 pm $\hat{=}$ 1,6 $\times$ 10^{11} Hz) sowie von der Resonanzabweichung des Lasers Δ bei breitbandigem Laser vermessen. Eine Messung der Abhängigkeit von der Resonanzabweichung bei Einengung des Lasers mit Etalon erfolgte nicht, da bei einem größeren Abstimmbereich eine Synchronisation von Gitter und Etalon erforderlich ist, die sich als technisch schwer realisierbar erwies.

Abstimmung auf die Zweiphotonenresonanz $6s8s\,^1S_0$

Die Komponenten im nahen UV, die bei Abstimmung des Farbstofflasers auf die Zweiphotonenresonanz $6s8s\,^1S_0$ als Summen- bzw. Differenzfrequenzen des Kopplungstyps $2\omega_L \pm \omega_I$ identifiziert werden konnten, sind in Tab. 1 aufgeführt. Als Erzeugungsmechanismus für die Idlerkomponenten kommt im wesentlichen optisch gepumpte stimulierte Emission (OPSE) in Frage, bei den Komponenten ω_{I1} und ω_{I5} zusätzlich durch parametrische Vierwellenkopplung verstärkt. Bei diesen Komponenten wäre auch ein Beitrag der Hyperramanstreuung möglich, der jedoch vernachlässigbar sein dürfte, da es sich um einen Prozess fünfter Ordnung handelt. Bei den restlichen Komponenten ω_{I2} - ω_{I4} kommt als zusätzlicher Erzeugungsmechanismus (Einphotonen-) Ramanstreuung in Frage, bei der die bei 307,2 nm ($6s^2\,^1S_0 \rightarrow 6s7p\,^1P_1$) bzw. 350,2 nm ($6s^2\,^1S_0 \rightarrow 5d6p\,^1P_1$) erzeugte Resonanzstrahlung als Pumpstrahlung wirkt. Auch dieser Anteil kann als klein ange-

nommen werden, da die erzeugenden Komponenten zu schwach sind, um einen nichtlinearen Prozess dritter Ordnung effizient zu initiieren.

Eine Ausnahme bezüglich der Erzeugungsmechanismen bilden die Komponenten $2\omega_L - \omega_{I1*}$ und $2\omega_L - \omega_{I5*}$, die jeweils 500 pm entfernt auf der langwelligen Seite der Resonanzen $6s^2\ {}^1S_0 \rightarrow 6s7p\,{}^1P_1$ und $6s^2\ {}^1S_0 \rightarrow 5d6p\,{}^1P_1$ mit einer um etwa einen Faktor 5 größeren Intensität als die zugehörigen resoanten Komponenten $2\omega_L - \omega_{I1}$ und $2\omega_L - \omega_{I5}$ nachgewiesen wurden. Sie stimmen spektral ungefähr mit berechneten Nullstellen der Phasenfehlanpassung überein und sind daher wahrscheinlich rein parametrischen Ursprungs.

Für eine Interpretation der gemessenen relativen Intensitäten sind mehrere Punkte heranzuziehen:

- die Phasenfehlanpassung
- die nichtlineare Suszeptibilität $\chi^{(3)}(\omega_F)$
- die Intensität der dazugehörigen Idlerkomponente I_I
- die Reabsorption der erzeugten Strahlung.

Die höchste relative Intensität wurde bei der Komponente 311,9 nm gemessen. Hier ist die Phasenfehlanpassung kleiner als bei den anderen nichtresonanten Komponenten und die nichtlineare Suszeptibilität wird durch die Nähe ($\cong$ 5 nm $\triangleq 2{,}6 \times 10^{13}$ Hz) der starken Einphotonenresonanz $6s^2\ {}^1S_0 \rightarrow 6s7p\,{}^1P_1$ erhöht, ohne daß die erzeugte Strahlung

reabsorbiert wird. Daß die zugehörige Idlerkomponente nicht deutlich intensiver als andere ist, zeigt ein Vergleich der Summenfrequenzkomponente 272,6 nm mit den Komponenten 258,4 nm und 276,3 nm.

Zu den stärkeren Idlerkomponenten gehört wohl ω_{I1}, da der Übergang am Anfang einer OPSE-Kaskade steht und die zugehörige Summenfrequenzkomponente $2\omega_L + \omega_{I1}$ relativ stark ist. Die Differenzfrequenzkomponente $2\omega_L - \omega_{I1}$ wird reabsorbiert und ist daher schlecht mit anderen Komponenten zu vergleichen. Eine schwächere Idlerkomponente ist ω_{I3} am Ende der OPSE-Kaskade. Die Differenzfrequenzkomponente $2\omega_L - \omega_{I3}$ ist relativ schwach und die Intensität der Summenfrequenzkomponente $2\omega_L + \omega_{I3}$ lag unterhalb der Nachweisgrenze. Auch die Idlerkomponente ω_{I4} scheint relativ stark zu sein, da Summen- und Differenzfrequenzkomponente $2\omega_L \pm \omega_{I4}$ trotz großer Phasenfehlanpassung effizient erzeugt werden.

Ein Vergleich der nah-resonanten rein parametrischen Komponenten $2\omega_L - \omega_{I1*}$ und $2\omega_L - \omega_{I5*}$ mit der nichtresonanten Differenzfrequenzkomponente $2\omega_L - \omega_{I2}$ zeigt, daß zumindest im Bereich der atomaren Sättigung, charakterisiert durch Umverteilung der Besetzungen im atomaren System, stimulierte Emission ein weit effizienterer Erzeugungsprozess für die Idlerkomponente ist als parametrische Erzeugnng. Die parametrische Komponente auf der langwelligen Seite der Resonanz 307,2 nm hat nämlich aufgrund der geringeren Resonanzab-

weichung von nur 500 pm eine um etwa eine Größenordnung größere Suszeptibilität für die Summenfrequenzmischung als die Komponente bei 311,9 nm; außerdem ist sie a priori phasenangepasst und erfährt kaum Reabsorption. Dennoch liegt sie im level nahezu eine Größenordnung unterhalb der nichtresonanten Komponente.

Unklar bleibt, weshalb die Summenfrequenzkomponente $2\omega_L + \omega_{I5}$ nicht nachgewiesen werden konnte. Die Idlerkomponente sollte, da sie am Anfang der OPSE-Kaskade steht, relativ stark sein, wahrscheinlich intensiver als die Komponente ω_{I1}, da die zugehörige Differenzfrequenzkomponente etwa einen Faktor 2 intensiver ist.

Abstimmung auf die Zweiphotonenresonanz 5d7s $^1D_2$

Die bei Abstimmung auf die Zweiphotonenresonanz 5d7s$^1D_2$ erzeugten Komponenten sind in Tab. 2 aufgelistet, ohne detaillierte Angabe der relativen Intensitäten. Hier dominiert die Komponente bei 353,3 nm, sie übertrifft die übrigen Komponenten in der Intensität um zwei bis drei Größenordnungen. Die in Klammern aufgeführte resonante Komponente bei 350,2 nm lag unterhalb der Nachweisgrenze.

Die Gründe für die Effizienz der Kopplung $2\omega_L - \omega_{I8}$ sind ähnlich wie bei der oben diskutierten 311,9 nm Komponente: Die nichtlineare Suszeptibilität $\chi^{(3)}(\omega_F)$ wird überhöht

durch die spektrale Nähe (≅ 3nm) zur Einphotonenresonanz $6s^2\ {}^1S_0 \rightarrow 5d6p\ {}^1P_1$, die Phasenfehlanpassung Δk ist mit 3 cm^{-1} kleiner als bei den übrigen Komponenten. Daß sich schon geringe Änderungen in Δk empfindlich auf die Ausgangsintensität I_F auswirken, kann durch die Oszillation der Abhängigkeit I_F (Δk) mit der Periode $2\pi/L$ (vgl. Anhang C) erklärt werden. So entspricht bei einer Schichtlänge von L = 20 cm der Abstand von einem Maximum zum benachbarten Minimum einer Variation von Δk um 0,16 cm^{-1}.

Bei Abstimmung auf die Zweiphotonenresonanz $5d7s\ {}^1D_2$ wurde mit Farbstofflaser /G3/ die Abhängigkeit der über den Bereich 250 - 380 nm integrierten Strahlung -d.h. im wesentlichen der Komponente bei 353,3 nm- von der Laserleistung gemessen. Fig. 10 zeigt Meßkurven, die beim Betrieb des Farbstofflasers mit und ohne Intracavity-Etalon, d.h. bei Laserbandbreiten von etwa 5 bzw. 30 pm ($2{,}6 \times 10^{10}$ bzw. $1{,}6 \times 10^{11}$ Hz) aufgenommen worden sind. Ein Grund dafür, daß auch im Sättigungsbereich die bei schmalbandiger Anregung erzeugte Leistung etwa einen Faktor 3 höher als bei Breitbandanregung ist, liegt wohl darin, daß auch der schmalbandige Laser in keiner Weise an die atomare Linienbreite angepaßt ist, die sich durch Dopplerverbreiterung zu etwa $\Gamma_D \cong 10^9$ Hz ergibt. Der Befund steht im Gegensatz zu den Untersuchungen zur Hyperramanstreuung am Strontium von Reif /62/, der über weite Bereiche keine Abhängigkeit der Konversion von der Laserbandbreite feststellen konnte.

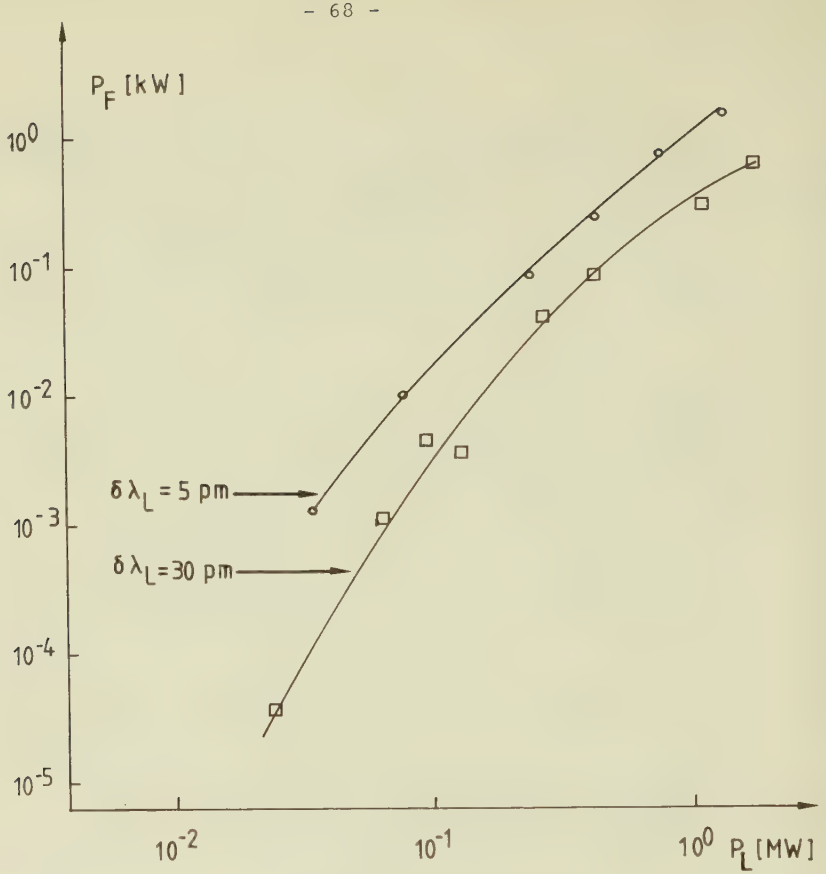

Fig. 10: Summen- und Differenzfrequenzmischung $\omega_F = 2\omega_L \pm \omega_I$ zweier Laserphotonen ω_L mit einem intern erzeugten Idlerphoton ω_I am Barium.

Abhängigkeit der bei Abstimmung auf die Zweiphotonenresonanz $5d7s\,^1D_2$ im Bereich 250 - 380 nm erzeugten Leistung von der Primärleistung bei verschiedenen Laserbandbreiten.

Bei beiden Kurven (Fig. 10) läßt sich qualitativ das Sättigungsverhalten erkennen. Aufgrund der Kleinsignalnäherung wäre schon für die Idlerkomponente eine exponentielle Abhängigkeit von der Laserleistung zu erwarten. Die Abhängigkeit der Differenzfrequenzkomponente müßte wie $I_F \sim I_L^2 \times \exp(cI_L^2)$ verlaufen.

Bei breitbandiger Laseranregung wurde die Abhängigkeit der integralen UV-Leistung von der Resonanzabweichung des Lasers gemessen (Fig. 11). Auffällig ist die Asymmetrie der Kurve, für die mögliche Gründe in der Phasenanpassung, in einer Asymmetrie der nichtlinearen Suszeptibilität, in einer Asymmetrie in den weiten Flügeln des Laserprofils sowie in asymmetrischen Verbreiterungsmechanismen der atomaren Resonanzen zu suchen sein können. Eine detaillierte Analyse des Linienprofils wurde nicht vorgenommen.

2.2.3. Weitere Kopplungschemata

Neben den UV-Komponenten, die durch Kopplung zweier Laserphotonen mit einem Idlerphoton entstehen, wurden im Spektralbereich bei 250 - 380 nm bei Abstimmung auf die Zweiphotonenresonanzen $6s8s\,^1S_0$ und $5d7s\,^1D_2$ auch andere Linien kohärenter Strahlung beobachtet, deren Erzeugungsmechanismen nur teilweise geklärt werden konnten.

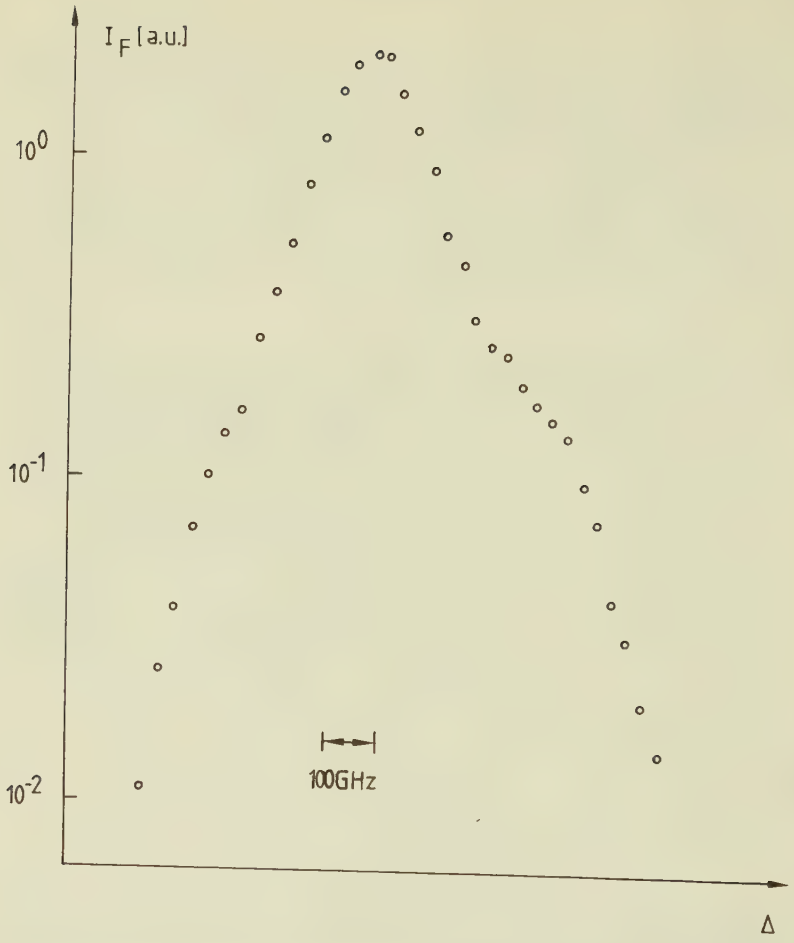

Fig. 11: Summen- und Differenzfrequenzmischung $\omega_F = 2\omega_L \pm \omega_I$ zweier Laserphotonen ω_L mit einem intern erzeugten Idlerphoton ω_I am Barium.

Abhängigkeit der bei Abstimmung auf die Zweiphotonenresonanz $5d7s\,^1D_2$ im Bereich 250 - 380 nm erzeugten Leistung von der Resonanzabweichung $\Delta = \Omega_{31} - 2\omega_L$ des Lasers.
P_L = 2 MW, $\delta\lambda_L$ = 30 pm.

Frequenzverdopplung

Bei Abstimmung auf beide Zweiphotonenresonanzen wurde Frequenzverdopplung nachgewiesen. Mögliche Mechanismen, die hierbei eine Rolle spielen können, wurden in 1.5.2. angesprochen. Interessant erscheint speziell die Verdopplung bei der Zweiphotonenresonanz $6s8s\,^1S_0$, da im Gegensatz zu der Resonanz J = 2 der entsprechende Einphotonenübergang auch in Quadrupolnäherung verboten ist. Eine Kopplung mit statischen Mikrofeldern (vgl. /45/) ist daher als Erzeugungsmechanismus anzunehmen.

Antistokes-Ramanstreuung

Eine Komponente bei 315,6 nm, die bei Abstimmung des Farbstofflasers auf die Zweiphotonenresonanz $6s8s\,^1S_0$ erzeugt wurde, kann als kohärente (Einphotonen-) Antistokes-Ramanstreuung, verbunden mit einem atomaren Übergang $6s7p\,^1P_1 \rightarrow 6s6p\,^1P_1$, identifiziert werden. Die Deutung wird gestützt durch den Wellenlängenabstand von Nebenmaxima, die bei Anregung mit Farbstofflaser /G1/ erzeugt wurden und die zeigen, daß am Erzeugungsprozess nur ein Laserphoton beteiligt ist. Da für das Auftreten dieser Komponente eine nennenswerte Besetzung des Ausgangszustandes $6s7p\,^1P_1$ notwendig ist, wird hierdurch zusätzlich die Umverteilung der atomaren Besetzungen unter den gegebenen experimentellen Bedingungen demonstriert, die für die beobachteten Sättigungserschei-

nungen verantwortlich gemacht wird.

Nah-resonante Emissionen

Die Erzeugung von Linienstrahlung bei 264,4, 273,9 und 278,4 nm wurde beobachtet. Auffällig ist, daß diese Komponenten in der Nähe von erlaubten Dipolübergängen in den Grundzustand ausgehend von den Niveaus $6s9p\,^1P_1$, $5d7p\,^3D_1$ und $6s8p\,^1P_1$ liegen. Die zugehörigen Erzeugungsmechanismen sind unklar. Prinzipiell wären nichtlineare Kopplungen höherer Ordnung denkbar. Spontane Emission aus den besetzten Ausgangszuständen erscheint aus zwei Gründen unwahrscheinlich:

- Die Emissionen sind nicht exakt resonant.
- Die erzeugte Strahlung erwies sich im Experiment als stark gebündelt.

Stimulierte Emission kann aufgrund der spektralen Lage der Linien und wegen der Überbesetzung des Grundzustandes völlig ausgeschlossen werden.

Weitere Komponenten im Spektralbereich 250 - 380 nm wurden nachgewiesen (vgl. /23/), konnten aber nicht identifiziert werden.

3. Untersuchungen am Cadmium

Cadmium gehört zu den Nebengruppenelementen und ist ein Zweielektronensystem mit relativ hohen Termenergien (Ionisationsgrenze bei 72539 cm^{-1} ≙ 138 nm, der tiefste angeregte Singulettzustand liegt energetisch höher als die Bariumionisationsgrenze). Es treten keine doppelt angeregten Zustände unterhalb der Ionisationsgrenze auf, das Termschema ist daher relativ einfach strukturiert. Cadmium hat einen niedrigen Schmelzpunkt (321°C /50/) und ist leicht verdampfbar (Dampfdruck 8 Torr bei 475°C /50/); trotzdem erweist sich die technische Handhabung von Cadmiumdampf als schwierig, da er sich z.B. als agressiv gegenüber Quarz und vielen Glassorten erwiesen hat /63/ und bislang keine Dochtmaterialien gefunden wurden, mit denen sich eine Cadmium-Heatpipe über längere Zeit stabil betreiben läßt /64/.

Aus diesem Grund sind auch am Cadmium nur wenige Untersuchungen nichtlinearer optischer Prozesse durchgeführt worden. Als Beispiel sei hier eine Arbeit von Kung und Mitarbeitern /65/ angeführt, in der die nichtresonante Frequenzverdreifachung und Summenfrequenzmischung der Harmonischen eines Nd:Yag-Lasers untersucht worden ist. Bei der Frequenzverdreifachung der zweiten Harmonischen des Primärlasers wurden Konversionsraten bis 10^{-4} bei 20 MW Eingangsleistung erzielt, was auf hohe nichtlineare Suszeptibilitäten des Cadmiums, d.h. auf eine spezielle Eignung für nichtlineare Frequenz-

umsetzungsprozesse schließen läßt.

In der vorliegenden Arbeit wurden die Vierwellenkopplungsprozesse untersucht, die bei Abstimmung des Primärlasers auf die Cadmium-Zweiphotonenresonanz $5s6s\,^1S_0$ ablaufen. Das Schwergewicht der Untersuchungen liegt dabei auf der Erzeugung von Idlerphotonen in der Nähe des atomaren Übergangs $5s6s\,^1S_0 \rightarrow 5s5p\,^1P_1$ (1040 nm) sowie auf der additiven Kopplung dieser Idlerphotonen mit zwei Laserphotonen. Durch die einfache Termstruktur (ein abgekürztes Termschema zeigt Fig. 12) lassen sich die Cadmiumatome durch ein Drei- bzw. Vierniveausystem annähern und Modellrechnungen basierend auf dem in 1.5. dargestellten Formalismus wurden durchgeführt.

3.1. Numerische Modellrechnungen zu den Cadmium-Experimenten

Zur Interpretation der experimentellen Ergebnisse am Cadmium, speziell zu den Messungen der Idler- und Summenfrequenzkomponente in Abhängigkeit der Versuchsparameter, wurde das Gleichungssystem (45/46) numerisch integriert. Im Anhang A sind die hierbei verwendeten Zahlenwerte aufgelistet. Im folgenden werden die bei der Herleitung des Gleichungssystems durchgeführten Näherungen im einzelnen diskutiert. Zum Verständnis der numerischen Lösungen werden analytische Abschätzungen für das Verhalten einzelner Terme im Gleichungssystem (45/46) angegeben.

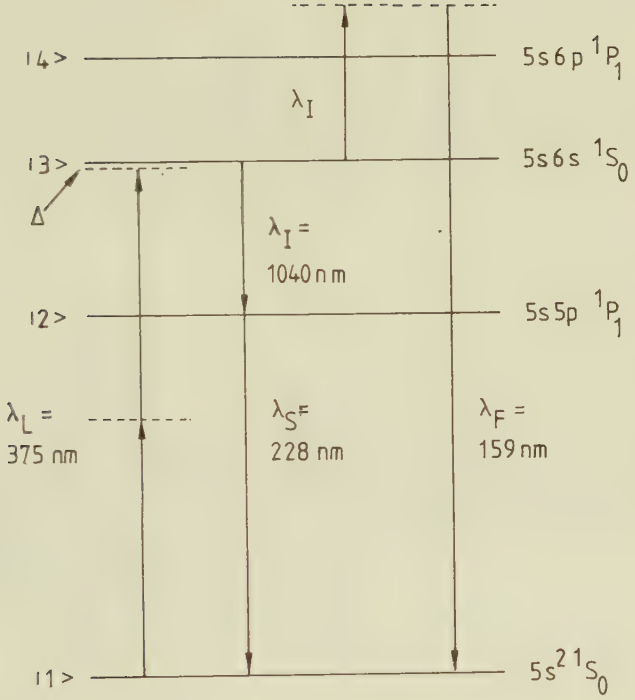

Fig. 12: Abgekürztes Cadmiumtermschema

3.1.1. Diskussion der Näherungen und vernachlässigter Terme

Ebene Wellen

Die Annahme ebener Wellen ist im Experiment recht gut erfüllt, da der konfokale Parameter mit b = 50 cm hinreichend groß gegenüber der Schichtlänge L = 8 cm ist.

Slow wave approximation

Die slow wave approximation (Vernachlässigung der zweiten Ableitungen in der Wellengleichung) ist solange unproblematisch, wie im Ansatz für die Fourierkomponenten realistische Wellenvektoren enthalten sind, in denen dispersive Effekte bereits berücksichtigt wurden (vgl. 1.5.1.). Im ursprünglichen Ansatz mit Vakuum - Wellenvektoren ist die Gültigkeit der slow wave approximation nur bei hinreichend kleinen linearen Suszeptibilitäten erfüllt.

$$N \, \mathrm{Re}\chi^{(1)} \ll 1 \qquad (47)$$

Diese Forderung wird aus einer Betrachtung der rein dispersiven Wechselwirkung zwischen Licht und Materie deutlich:

$$\begin{aligned} \mathrm{Re}\chi^{(1)} &\neq 0 \\ \mathrm{Im}\chi^{(1)} &= 0 \\ \chi^{(n)} &= 0, \text{ für } n > 1 \end{aligned} \qquad (48)$$

Mit dem Ansatz $E = \hat{E}_0 \, e^{i(\{k_0+k'\}z - \omega t)}$

erhält man

$$E = \hat{E}_0 \, e^{ik'z} \, e^{i(k_0 z - \omega t)} = E_0(z) \, e^{i(k_0 z - \omega t)} \qquad (49)$$

und für die zweite Ableitung der Amplitude nach dem Ort

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} E_0(z) = i\,k' \frac{\partial}{\partial z} E_0(z) = -k'^2 \, E_0(z) \qquad (50)$$

Da

$$k' \cong \frac{N \, \mathrm{Re}\, \chi^{(1)} \omega}{2} \qquad (51)$$

ist, ist die zweite Ableitung der Amplitude gegenüber der ersten Ableitung nur bei hinreichend kleiner linearer Suszeptibilität vernachlässigbar.

Bei den am Cadmium untersuchten Vierwellenkopplungsprozessen ist die Gültigkeit der slow wave approximation nur bei der Signalkomponente schlecht erfüllt. Die Signalkomponente liegt -je nach Resonanzabweichung des Lasers- innerhalb der Halbwertsbreite des Resonanzübergangs $5s^2\,{}^1S_0 \rightarrow 5s5p\,{}^1P_1$. Aus Gleichung (23) erhält man als obere Grenze für $\mathrm{Re}\, \chi^{(1)}(\omega_S)$

$$\mathrm{Re}\, \chi^{(1)}(\omega_S) \leq \frac{1}{\varepsilon_0 \hbar} \frac{\mu_{12}\,\mu_{21}}{\Gamma_{21}} \qquad (52)$$

und mit den Zahlenwerten aus Tab. 3 (Anhang A) bei einer Teilchendichte von 10^{17} cm^{-3}

$$N \, \mathrm{Re} \, \chi^{(1)}(\omega_S) \leq 0{,}13 \qquad (53)$$

Die Näherung der slow wave approximation ist dennoch unproblematisch, da sich der Einfluß der erzeugten Signalkomponente auf Idler- und Summenfrequenzkomponenete als so klein erweist, daß sämtliche dispersiven Effekte bei der Signalkomponente vernachlässigt werden können.

Die linearen Suszeptibilitäten bei Laser- und Summenfrequenz sind wegen der größeren Abweichungen von Einphotonenresonanzen um Größenordnungen kleiner. Die Idlerkomponente wird exakt resonant erzeugt, so daß der Übergang $5s6s\,^1S_0 \rightarrow 5s5p\,^1P_1$ nicht zum Realteil der linearen Suszeptibilität beiträgt, andere Einphotonenresonanzen sind hinreichend weit entfernt.

Dipolnäherung

Die Dipolnäherung ist im betrachteten Vierniveausystem gut erfüllt. Der Übergang $5s^2\,{}^1S_0 \rightarrow 5s6s\,^1S_0$ ist in allen Multipolnäherungen verboten. Der in Quadrupolnäherung erlaubte Übergang $5s5p\,^1P_1 \rightarrow 5s6p\,^1P_1$ ist vernachlässigbar, da er nichtresonant zu allen eingestrahlten Feldern liegt.

Vierniveausystem

Die Näherung des Vierniveausystems ist problematisch. Einige experimentelle Ergebnisse deuten darauf hin, daß Ein- und Mehrphotonenionisationsprozesse eine nicht zu vernachlässigende Rolle spielen. Das Auftreten der in allen Multipolnäherungen verbotenen resonanten Frequenzverdopplung ließe sich durch eine inhomogene Ladungsträgerverteilung, erzeugt durch Photoionisation, erklären. Unter gleichen experimentellen Bedingungen wurden unter 90° Fluoreszenzspektren aufgenommen, in denen eine Reihe von Übergängen zwischen hoch angeregten Triplett-Zuständen auftraten /69/. Bei höheren Laserintensitäten konnten visuell in der Fluoreszenz inhomogene Leuchterscheinungen festgestellt werden, die auf lokale Gasdurchbrüche zurückzuführen sein können. Abschätzungen der Ionisationsrate geben diesen Sachverhalt nur unvollkommen wieder. Die Ionisation erfolgt über drei Kanäle:

- zweiphotonenresonante Dreiphotonenionisation vom Grundzustand aus
- Einphotonenionisation vom besetzten Zustand $5s6s\,^1S_0$ aus
- Einphotonenionisation ausgehend vom Grundzustand durch Reabsorption der erzeugten frequenzverdreifachten Strahlung.

Die ersten beiden Prozesse sind i.a. konkurrierend /70/, der dritte Prozess ist aufgrund des schwachen Strahlungsfeldes gegenüber den ersten beiden vernachlässigbar. Für eine Abschätzung genügt es daher, die beiden erstgenannten

Prozesse getrennt zu behandeln.

Wie in 1.5.4. bereits angedeutet wurde, erfolgt die Abschätzung der Dreiphotonenionisation über einen Vergleich mit experimentellen Querschnitten mit Einphotonenionisation vom Grundzustand aus. Mit den Gleichungen (23) und (3) erhält man

$$\frac{\sigma_G^{(5)}}{\sigma_G^{(1)}} = \frac{1}{10} \left(\frac{2\mu_{12}\mu_{23}\mu_{3c}}{c\ \varepsilon_0 \mu_{1c} (\omega_L - \Omega_{12}) \Gamma_{13} \hbar^2} I_L \right) \tag{54}$$

und mit Gleichung (41) sowie dem experimentellen Wert /71/

$$\sigma_G^{(1)} = 1{,}5 \times 10^{-17}\ \mathrm{cm}^2 \tag{55}$$

ergibt sich bei einer Primärintensität von 10^8 W/cm^2

$$\sigma_G^{(5)} = 1{,}4 \times 10^{-21}\ \mathrm{cm}^2 \tag{56}$$

Die hierzu entsprechende Rate von

$$W_G^{(5)} = 8 \times 10^5\ \mathrm{s}^{-1} \tag{57}$$

ist hinreichend klein gegenüber der reziproken Laserpulsdauer (T_L = 6ns), so daß der Effekt vernachlässigbar ist.

Der Querschnitt für Einphotonenionisation vom angeregten Zustand aus ist nach (Gl. 23) und (Gl. 41) gleich dem Einphotonenionisationsquerschnitt für Grundzustandsatome (Gl. 55). Die hieraus berechnete Rate von

$$W_E^{(1)} = 2{,}9 \times 10^9 \ s^{-1} \qquad (58)$$

ließe auf eine völlige Entleerung des $5s6s\,^1S_0$-Zustandes durch Photoionisation schließen, die im Widerspruch zur Art der experimentell nachgewiesenen Sättigungsphänomene steht.

Stationarität

Auch die Größenordnung des Fehlers, der durch die stationäre Behandlung des Problems entsteht, ist unklar. Abschätzungen zeigen, daß man bei dem hier betrachteten System an der Grenze des Gültigkeitsbereiches dieser Näherung liegt. Die Annahme der Stationarität wirkt sich auf die Berechnung der Nichtdiagonalelemente der Dichtematrix im Rahmen der Störungsrechnung, die Berechnung der Diagonalelemente in den Ratengleichungen und auf die Behandlung der Felder in den Wellengleichungen aus.

Für die Berechnung der Nichtdiagonalelemente ist die stationäre Näherung streng gültig, falls die Laserpulsdauer T_L groß gegenüber den longitudinalen und transversalen Relaxations-

zeiten des Systems ist.

$$T_L >> \frac{1}{\Gamma_{ii}}, \frac{1}{\Gamma_{ij}} \tag{59}$$

Unter den gegebenen Verhältnissen ist allerdings

$$\frac{1}{\Gamma_{ii}} \cong 10^{-7}\ s > T_L = 6 \times 10^{-9}\ s > \frac{1}{\Gamma_{ij}} \cong 5 \times 10^{-11}\ s \tag{60}$$

Für den speziellen Fall der nichtresonanten Anregung $|\Delta + i\Gamma_{ij}| > \frac{1}{T_L}$ der im Experiment realisiert wurde, liegen jedoch von Puell /10/ zeitabhängige Berechnungen im Rahmen der Störungstheorie vor, die es erlauben, den durch die stationäre Näherung gemachten Fehler abzuschätzen. Es handelt sich um einen Korrekturfaktor $(1 + 1/\Delta\ \partial/\partial t)$, mit dem die Primärfeldstärke in der Wellengleichung zu versehen ist. Die Abweichung $1/\Delta\ \partial/\partial t$ kann unter den vorliegenden Bedingungen zu 10^{-3} abgeschätzt werden und ist somit vernachlässigbar.

Zur Beurteilung der Gültigkeit im Ratengleichungssystem ist die Laserpulsdauer mit den hier auftretenden Zeitkonstanten, speziell der reziproken Rate für Zweiphotonenabsorption und der Lebensdauer des angeregten Zustandes $5s6s\,^1S_0$ zu vergleichen. Die Lebensdauer des zweiphotonenresonanten Zustandes liegt zwar eine Größenordnung über der Laserpulsdauer, die Gültigkeit der Näherung dürfte aber davon unberührt bleiben, da die Zweiphotonenresonanz durch

stimulierte Emission um mehrere Größenordnungen schneller entleert wird als durch spontane Emission, die durch die longitudinale Relaxationsrate beschrieben wird.

Die reziproke Rate für Zweiphotonenabsorption (Gl. 33) ist nur bei den größten im Experiment realisierten Eingangsintensitäten und im Zentrum der Zweiphotonenresonanz kleiner als die Laserpulsdauer. Hierdurch bedingte Fehler sollten die Sättigungseffekte in den Rechnungen stärker auftreten lassen als der experimentellen Situation entspricht; speziell sollten berechnete Absolutleistungen hierdurch deutlich unter den real gemessenen Werten liegen.

Die Vernachlässigung der Zeitableitung in der Wellengleichung ist unter den gegebenen Bedingungen gültig, da die Länge des Lichtpulses groß gegenüber der Schichtlänge ist.

$$c \cdot T_L \cong 1{,}5 \text{ m} \gg L = 0{,}08 \text{ m} \qquad (61)$$

Höhere Ordnungen der Störungsrechnung

Zur Rechtfertigung des Abbruchs der Störungsrechnung nach der dritten Ordnung werden die führenden Terme der fünften Ordnung diskutiert. Bezüglich der Dreiphotonenionisation sei auf den Abschnitt "Vierniveausystem" dieses Kapitels

verwiesen. Der zweite innerhalb der fünften Ordnung dominierende Prozess ist die stimulierte Hyperramanstreuung (vgl. 1.5.4.).

Einen Anhaltspunkt für die Größenordnung des Effektes gibt der Leerlauf-gain in der Kleinsignalnäherung.

$$g_{SEHRS} = \frac{\omega_I N \chi^{(5)}(\omega_I)}{c} |E_L|^4 \qquad (62)$$

Mit (Gl. 39) erhält man

$$g_{SEHRS} = \frac{\omega_I N |\mu_{12}|^2 |\mu_{23}|^4 I_L^2}{15 \varepsilon_0^3 c^3 \hbar^5 \Gamma_{12} \Gamma_{13}^2 (\Omega_{12}-\omega_L)^2} \qquad (63)$$

Diese Größe ist zu vergleichen mit dem Leerlauf-gain für parametrische Erzeugung, dem analogen Erzeugungsprozess für die Idlerkomponente in der dritten Ordnung. In der Kleinsignalnäherung wurde dieser gain von Schöne /22/ durch eine Lösung der gekoppelten Wellengleichungen für die Signal- und Idlerkomponente berechnet. Das Ergebnis wird hier ohne detaillierte Herleitung übernommen.

$$g_{PG} = \frac{2\omega_I N |\mu_{12}|^2 |\mu_{23}|^4 I_L^2}{9 \varepsilon_0^3 c^3 \hbar^5 \Gamma_{12} \Gamma_{13}^2 (\Omega_{12}-\omega_L)^2} \qquad (64)$$

Im Bereich der Kleinsignalnäherung ist der gain für Hyperramanstreuung also etwa um einen Faktor drei geringer als der gain für parametrische Erzeugung. Da die erzeugte Inten-

sität im Gültigkeitsbereich der Kleinsignalnäherung exponentiell vom gain abhängt, führt die parametrische Erzeugung zu Ausgangsleistungen, die um mehrere Größenordnungen über denen der Hyperramanstreuung liegen, sofern man die Prozesse entkoppelt betrachten kann.

Dafür, daß auch im Bereich der atomaren Sättigung die Hyperramanstreuung vernachlässigbar ist, sprechen experimentelle Befunde. Messungen der spektralen Verteilung der Idlerkomponente ergaben, daß diese festfrequent, unabhängig von der Resonanzabweichung des Primärfeldes ist. Die Hyperramanstreuung sollte -aufgrund der Struktur des Prozesses- nur einen Beitrag zur frequenzveränderlichen, an die Resonanzabweichung des Primärfeldes gebundenen Idlerkomponente liefern. In diesem Punkt weichen die hier dargelegten Ergebnisse von den Untersuchungen von Reif /7/, /62/ und Schöne /22/ ab, unter deren experimentellen Bedingungen Hyperramanstreuung eine nicht zu vernachlässigende Rolle spielt.

Ratengleichungsnäherung

Die Berechnung der Diagonalelemente der Dichtematrix in einem Ratengleichungssystem stellt für sich genommen keine Näherung dar, solange die Wechselwirkungen mit den nichtdiagonalen Elementen in zusätzlichen Gleichungen -und sei es im Rahmen der Störungstheorie- berücksichtigt werden.

Innerhalb des hier gelösten Ratengleichungssystems treten allerdings als Näherungen die stationäre Behandlung, die Beschränkung auf ein Vierniveausystem sowie die Vernachlässigung von Prozessen höherer Ordnung auf. Zur Diskussion dieser Näherungen sei auf die entsprechenden Abschnitte dieses Kapitels verwiesen.

Behandlung der Linienbreiteneffekte

Der hier dargelegte Formalismus ist streng gültig nur für ein monochromatisches, d.h. Fourier-begrenztes Primärfeld. Zur Berücksichtigung einer breitbandigen Anregung ist eine Faltung des spektralen Laserprofils mit dem Frequenzprofil der jeweiligen Suszeptibilität durchzuführen. Da unter den gegebenen experimentellen Bedingungen die Laserbandbreite Γ_L mit $2{,}6 \times 10^{11}$ Hz groß gegenüber den atomaren Linienbreiten (ca. $2{,}0 \times 10^{10}$ Hz) ist, wurden näherungsweise die in den Suszeptibilitäten auftretenden relevanten atomaren Linienbreiten Γ_{12} und Γ_{13} jeweils durch die Laserbandbreite ersetzt. Die Linienbreite Γ_{23} wurde gleich der atomaren, durch Stoßverbreiterung bestimmten Breite gewählt, da sich die Idlerkomponente als festfrequent und von der spektralen Verteilung des Primärfeldes unabhängig erwiesen hat. Die inhomogenen Linienbreiten (Dopplerbreiten) sind von der Größenordnung 10^9 Hz und lassen sich somit gegenüber den homogenen Linienbreiten vernachlässigen. Exaktere, aber weit aufwendigere Formalismen zur Berücksichtigung der

Linienbreiteneffekte wurden u.a. von Stappaerts /47/ und Leubner /48/ entwickelt.

Die experimentellen Untersuchungen in Abhängigkeit der Laserbreite haben ergeben, daß das qualitative Sättigungsverhalten der erzeugten Idlerkomponente von der Laserbandbreite unbeeinflußt ist und daß bei höheren Eingangsleistungen sogar die absolute Ausgangsleistung von der Laserbandbreite unabhängig wird. Dieses Ergebnis, das in Übereinstimmung mit den Untersuchungen von Reif /62/ ist, läßt darauf schließen, daß Effekte der Laserbandbreite im Bereich der atomaren Sättigung eine untergeordnete Rolle spielen und daher auch auf eine exaktere formale Berücksichtigung verzichtet werden kann.

Vernachlässigung des dynamischen Stark-Effekts

Der dynamische Stark-Effekt äußert sich durch eine Einphotonen-Stark-Verschiebung und eine Zweiphotonen-Stark-Aufspaltung der Niveaus (vgl. 1.5.5.).

Die Einphotonen-Stark-Verschiebung (Gl. 42) ergibt sich bei einer Primärintensität von 10^8 W/cm^2 mit den in Tab. 3 (Anhang A) aufgeführten Werten zu

$$\Delta E = 1.9 \times 10^{-25} \text{ J} \qquad (65)$$

entsprechend einer Kreisfrequenz von

$$\Delta\omega = 1{,}8 \times 10^9 \text{ Hz} \qquad (66)$$

Die Zweiphotonen-Stark-Aufspaltung (Gl. 43) läßt sich unter gleichen Bedingungen zu

$$\delta = 2 \times 10^9 \text{ Hz} \qquad (67)$$

berechnen.

Da beide Frequenzkorrekturen klein gegenüber der Laserbandbreite $\Gamma_L = 2{,}6 \times 10^{11}$ Hz sind, ist der dynamische Stark-Effekt unter den gegebenen experimentellen Bedingungen vernachlässigbar.

Behandlung der Phasenanpassung

Die in der vorliegenden Arbeit gewählte Behandlung der Phasenanpassung ergab sich aus der Notwendigkeit, das Gleichungssystem (44) so zu vereinfachen, daß bei der numerischen Behandlung eine Konvergenz der Iteration innerhalb einer angemessenen Rechenzeit gewährleistet war. Phasenanpassungseffekte bei der Erzeugung der Idlerkomponente bleiben unberücksichtigt, sie lassen sich jedoch qualitativ anhand der experimentellen Ergebnisse diskutieren. Bei der Summenfrequenzkomponente werden die Phasen-

anpassungseffekte qualitativ richtig behandelt, auf quantitative Abweichungen zwischen Rechnung und Experiment wird im Rahmen der Diskussion der Ergebnisse eingegangen (vgl. 3.3.2.).

Schwächung des Primärfeldes

Die Vernachlässigung der Schwächung des Primärfeldes (pump depletion) ist aufgrund von Abschätzungen und experimentellen Ergebnissen gerechtfertigt. Der Querschnitt für Zweiphotonenabsorption, für den dominierenden Schwächungsprozess, ergibt sich zu (vgl. 1.5.)

$$\sigma^{(3)}(\omega_L) = \frac{2\omega_L \, \mathrm{Im}\chi^{(3)}(\omega_L)}{c^2 \, \varepsilon_0} \, I_L \qquad (68)$$

und die optische Tiefe $d = \sigma^{(3)}(\omega_L) \cdot N \cdot L$ zu

$$d = \frac{2 \, L \, \omega_L N \, \mathrm{Im}\chi^{(3)}(\omega_L)}{c^2 \, \varepsilon_0} \, I_L \qquad (69)$$

Mit Gleichung (32) und den in Tab. 3 (Anhang A) aufgeführten Werten unter Vernachlässigung der Besetzung angeregter Zustände erhält man bei einer Laserintensität von 10^8 W/cm^2, einer Teilchendichte von 10^{17} cm^{-3} und resonant abgestimmtem Laser

$$d = 1{,}1 \times 10^{-2} \qquad (70)$$

Auch experimentell konnte eine Schwächung des Primärfeldes bei einer Nachweisgrenze von ca. 2 % nicht festgestellt werden.

Vernachlässigung des nichtlinearen Brechungsindex

Zur Abschätzung des nichtlinearen Brechungsindex wird auf eine Arbeit von Lehmberg /15/ verwiesen. Der nichtlineare Brechungsindex bei der Laserwellenlänge ergibt sich mit den Zahlenwerten, die sämtlichen Abschätzungen dieses Kapitels zugrunde liegen, nach (Gl. 34) zu

$$\delta n^{(3)}(\omega_L) = 6{,}4 \times 10^{-8} \qquad (71)$$

und das Verhältnis der Strahldurchmesser am Eingang und Ausgang der Metalldampfschicht zu

$$D/D_0 = 1{,}2 \qquad (72)$$

Da der lineare Anteil am Brechungsindex bei der Laserwellenlänge

$$(n - 1) = 5{,}5 \times 10^{-6} \qquad (73)$$

beträgt, ist der nichtlineare Anteil für die Berechnung der Phasenfehlanpassung vernachlässigbar. Ebenso kann auf eine Berücksichtigung der Selbstfokussierung verzichtet werden.

3.1.2. Analytische Abschätzungen zur optisch gepumpten stimulierten Emission

Zum besseren Verständnis der numerischen Lösungen wurden analytische Abschätzungen für einzelnen Prozesse durchgeführt. Im Fall der optisch gepumpten stimulierten Emission (OPSE) wurde ein gegenüber 1.5. vereinfachter Formalismus verwendet. Unter Vernachlässigung der Felder bei den Frequenzen ω_S und ω_F wird von den Wellengleichungen nur (46a) betrachtet, die in eine Gleichung für den Photonenfluß $\Phi_I = I_I/\hbar\omega_I$ umgewandelt wird, da Phaseneffekte unberücksichtigt bleiben.

Statt der von Null verschiedenen Anfangswertbedingungen erschien es hier einfacher, spontane Emission durch einen additiven Term in der Gleichung selbst zu berücksichtigen; mit g(z) wird hierbei ein Geometriefaktor eingeführt, der den Anteil des Raumwinkels beschreibt, unter dem vom Punkt z aus das gepumpte Volumen gesehen wird. In den Ratengleichungen treten statt der Dichtematrixelemente ρ_{ii} die Besetzungsdichten N_i auf, wobei

$$N_i = N \cdot \rho_{ii} \tag{74}$$

Der formale Vorteil für eine analytische Behandlung ist darin zu sehen, daß $\partial/\partial z\ \Phi_I$ dimensionsgleich zu $\partial/\partial t\ N_i$ ist und so in allen Gleichungen die selben Koeffizienten

-in 1.5. beschrieben durch Suszeptibilitäten bzw. Absorptionskoeffizienten- auftreten. Unter diesen Voraussetzungen erhält man das Gleichungssystem

$$\frac{\partial}{\partial z}\,\Phi = \sigma_I(N_3(z)-N_2(z))\Phi_I(z) + \Gamma_{33}N_3(z)g(z) \qquad (75a)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}\,N_2(z) = \sigma_I(N_3(z)-N_2(z))\Phi_I(z) + \Gamma_{33}N_3(z)-\Gamma_{22}N_2(z) \qquad (75b)$$

$$\frac{\partial}{\partial z}\,N_1(z) = W_L(N_3(z)-N_1(z)) + \Gamma_{22}N_2(z) \qquad (75c)$$

$$N = N_1(z) + N_2(z) + N_3(z) \qquad (75d)$$

wobei der Querschnitt für Einphotonenabsorption σ_I mit der Größe α_I in Gleichung (45b) über

$$\sigma_I = \alpha_I \frac{2h\omega_I}{c\varepsilon_0} \qquad (76)$$

und die Rate für Zweiphotonenabsorption W_L mit der Größe α_L in der Gleichung (45a) über

$$W_L = \alpha_L |E_L|^4 \qquad (77)$$

verknüpft sind.

In der stationären Näherung $\partial/\partial t = 0$ läßt sich dieses

Gleichungssystem zu einer gewöhnlichen Differentialgleichung für Φ_I zusammenfassen, die analytisch gelöst werden kann. Mit der Anfangswertbedingung $\Phi_I(0) = 0$ erhält man

$$\Phi_I(z) = \frac{d}{c} \left\{ \exp \left[\frac{c^2}{bc-ad} \left(N z - \frac{a}{c} \Phi_I(z) \right) \right] - 1 \right\} \qquad (78)$$

mit den Abkürzungen

$$a = \sigma_I (3W_L + \Gamma_{22}) \qquad (79a)$$

$$b = 2W_L \Gamma_{22} + (W_L + \Gamma_{22}) \Gamma_{33} \cong (2W_L + \Gamma_{33}) \Gamma_{22} \qquad (79b)$$

$$c = W_L \sigma_I (\Gamma_{22} - \Gamma_{33} + g(z) \Gamma_{33}) \cong W_L \sigma_I \Gamma_{22} \qquad (79c)$$

$$d = W_L \Gamma_{33} \Gamma_{22} g(z) \qquad (79d)$$

wobei $\Gamma_{22} >> \Gamma_{33}$ und $g(z) << 1$ angenommen wird. Zur Diskussion der Lösung wird die transzendente Gleichung (78) umgeformt in

$$W_L = \frac{\Gamma_{22} \{ \Gamma_{33} \ln (\sigma_I \Phi_I \Gamma_{33}^{-1} g^{-1}(z) + 1) + \sigma_I \Phi_I \}}{\Gamma_{22} \sigma_I N z - 3 \sigma_I \Phi_I - 2 \Gamma_{22} \ln (\sigma_I \Phi_I \Gamma^{-1} g^{-1}(z) + 1)} \qquad (80)$$

Für verschiedene Bereiche der Pumpfeldstärke und damit der Zweiphotonenabsorptionsrate W_L lassen sich verschiedene Näherungslösungen von Φ_I angeben. Der gesamte Bereich der Lösungen $\Phi_I(z)$ liegt zwischen

$$\Phi_I(z) \equiv 0 \qquad \text{für} \quad W_L = 0 \tag{81}$$

und

$$\Phi_I(z) \to \Gamma_{22} Nz/3 \quad \text{für} \quad W_L \to \infty \tag{82}$$

In diesem Intervall von Φ_I wird die Umkehrfunktion (Gl. 80) betrachtet.

Bereich "Spontane Emission"

Für kleine Φ_I, genauer $\Phi_I < \frac{\Gamma_{33} g(z)}{\sigma_I}$, wird der Logarithmus in Gleichung (80) entwickelt

$$\ln\left(\frac{\sigma_I \Phi_I}{\Gamma_{33} g(z)} + 1\right) \cong \frac{\sigma_I \Phi_I}{33 \; g(z)} \tag{83}$$

Man erhhält mit $W_L << \Gamma_{33}$

$$\Phi_I(z) \cong g(z) W_L Nz \tag{84}$$

die durch spontane Emission in den durch g(z) bestimmten Raumwinkel emittierten Photonen. Der zugehörige Bereich von Zweiphotonen-Absorptionsraten ist durch

$$W_L < \frac{\Gamma_{32}}{\sigma_I Nz} \tag{85}$$

charakterisiert (vgl. Fig. 13, Bereich I).

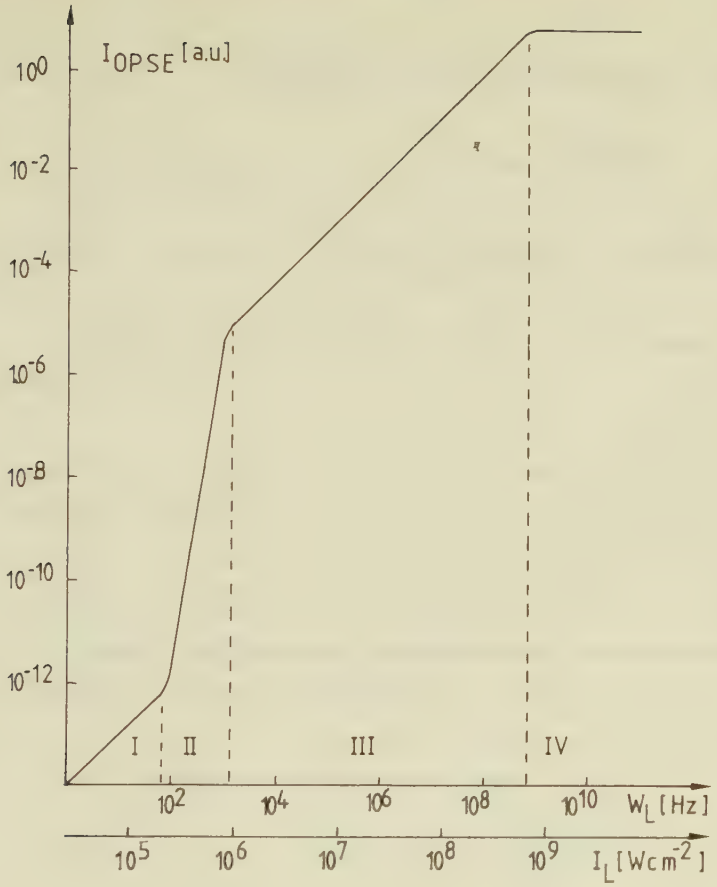

Fig. 13: Analytische Abschätzungen zu den Elementarprozessen bei der Idlererzeugung:

Optisch gepumpte stimulierte Emission (OPSE).

Abhängigkeit der erzeugten Intensität von der Primärintensität.

Bereich "Ungesättigte stimulierte Emission"

Für $\Phi_I > \frac{\Gamma_{32}\, g(z)}{\sigma_I}$ wird

$$\ln\left(\frac{\sigma_I\, \Phi_I}{\Gamma_{33}\, g(z)} + 1\right) \cong \ln \frac{\sigma_I\, \Phi_I}{\Gamma_{33}\, g(z)} \qquad (86)$$

Ist andererseits $\Phi_I < \frac{\Gamma_{33}}{\sigma_I} \ln \frac{\sigma_I\, \Phi_I}{\Gamma_{33} g(z)} \cong \frac{\Gamma_{33}}{\sigma_I} \ln \frac{\sigma_I \Gamma_{22}\, Nz}{3\, \Gamma_{33}\, g(z)}$,

so erhält man

$$\Phi_I(z) \cong \Gamma_{33}\, \frac{g(z)}{\sigma_I}\, \exp\left(\sigma_I W_L\, Nz/\Gamma_{33}\right) \qquad (87)$$

d.h. die für ungesättigte stimulierte Emission charakteristische exponentielle Abhängigkeit des Photonenflusses von Pumprate, Teilchendichte und Schichtlänge. Der zugehörige Bereich von Pumpraten kann in etwa mit

$$\frac{\Gamma_{33}}{Nz\sigma_I} < W_L < \frac{\Gamma_{33}}{Nz\sigma_I} \ln\left(\sigma_I\, Nz/g(z)\right) \qquad (88)$$

beschrieben werden, wobei $W_L < \Gamma_{33}$ nach wie vor vorausgesetzt ist. (vgl. Fig. 13, Bereich II)

Bereich "Sättigung auf dem Übergang $|3> \rightarrow |2>$"

$$\left.\begin{array}{l} \text{Für } \Phi_I > \dfrac{\Gamma_{33}}{\sigma_I} \ln\left(\dfrac{\sigma_I \Gamma_{22}\, Nz}{3\Gamma_{33}\, g(z)}\right) \\ \\ \text{bzw. } W_L > \dfrac{\Gamma_{33}}{Nz\,\sigma_I} \ln\left(\dfrac{\sigma_I Nz}{g(z)}\right) \end{array}\right\} \qquad (89)$$

erhält man

$$\Phi_I(z) \cong \frac{\Gamma_{22}}{3W_L + \Gamma_{22}} W_L Nz \qquad (90)$$

Gilt zusätzlich $W_L < \Gamma_{22}$, so lässt sich (Gl. 90) näherungsweise als

$$\Phi_I \cong W_L Nz \qquad (91)$$

schreiben. Der Bereich ist charakterisiert durch Sättigung auf dem Übergang $|3> \rightarrow |2>$, d.h. durch das erzeugte Strahlungsfeld wird die Besetzungsinversion abgebaut. Der Photonenfluß wird proportional zur Pumprate, d.h. zum Quadrat der Primärintensität, zur Teilchendichte und zur Schichtlänge (vgl. Fig. 13, Bereich III).

Bereich "Entleerung des Grundzustandes"

Im Bereich $W_L > \Gamma_{22}$ erhält man aus (Gl.90)

$$\Phi \cong \frac{\Gamma_{22}}{3} Nz \qquad (92)$$

als maximalen Photonenfluß (vgl. Gl. 82). Da die Entleerungsrate W_L des Grundzustandes größer als die Wiederbesetzungsrate Γ_{22} ist, wird die Erzeugung hier durch die Wiederbesetzungsrate limitiert und unabhängig von der Pumprate. Eine Proportionalität des Photonenflusses zur Säulentiefe Nz ist

auch hier zu erwarten (vgl. Fig. 13, Bereich IV).

Die Abhängigkeit des Photonenflusses von der Resonanzabweichung des Lasers wird allein durch das Linienprofil für Zweiphotonenabsorption, das in die Absorptionsrate eingeht, geprägt. Dieses Linienprofil, näherungsweise Lorentz-förmig, sollte im Bereich der Sättigung auf dem Übergang $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$ im Photonenfluß reproduziert werden (vgl. Gl. 91). Dagegen ist im Bereich der Entleerung des Grundzustandes eine Verbreiterung zu erwarten, wie sie für gesättigte Absorption typisch ist (vgl. 3.1.3., Gl. 96 sowie 3.3.2.).

3.1.3. Analytische Abschätzungen zur parametrischen Vierwellenkopplung

Die parametrische Vierwellenkopplung zeigt ein prinzipiell anderes Sättigungsverhalten als die OPSE. Durch den Prozess selbst findet keine Umverteilung der atomaren Besetzungen statt. Lediglich die parallel ablaufenden Prozesse der Zweiphotonenabsorption der Primärstrahlung sowie der Einphotonenabsorption der Signalkomponente führen zu Besetzungsänderungen, die in einer Reduktion der für den parametrischen Prozess relevanten Suszeptibilitäten (vgl. Gl. 36/37) resultieren.

Eine analytische Integration der Wellengleichungen für parametrische Erzeugung unter Berücksichtigung der Ratengleich-

ungen analog zur Behandlung der OPSE war nicht möglich. Es kann lediglich die Auswirkung der Zweiphotonenabsorption auf den parametrischen Prozess diskutiert werden.

Dazu wird die Lösung im Kleinsignalbereich

$$I_I = I_0 \exp (g_{PG} z) \tag{93}$$

mit

$$g_{PG} = \frac{2N \omega_I}{9c^3 \varepsilon_0^3 \hbar^5 \Gamma_{12} (\Delta^2 + \Gamma_{13}^2)} \left(\frac{\mu_{12} \mu_{23}^2}{\Omega_{12} - \omega_L} \right)^2 I_L^2 \tag{94}$$

(vgl.Gl. 64) in Analogie zum Ansatz von Ward /13/ mittels eines Sättigungsparameters S für Zweiphotonenabsorption erweitert. Man erhält

$$I_I = I_0 \exp (g_{PG}^S z) \tag{95}$$

mit

$$g_{PG}^S = \frac{2N \omega_I (\Delta^2 + \Gamma_{13}^2)}{9c^3 \varepsilon_0^3 \hbar^5 \Gamma_{12} \{\Delta^2 + \Gamma_{13}^2 (1+S)\}^2} \left(\frac{\mu_{12} \mu_{23}^2}{\Omega_{12} - \omega_L} \right) \tag{96}$$

und

$$S = \frac{T_L}{\Gamma_{13}} \left(\frac{\mu_{12} \mu_{23} I_L}{\hbar c \varepsilon_0 (\Omega_{12} - \omega_L)} \right)^2 \tag{97}$$

wobei T_L die Laserpulsdauer ist.

Die wesentlichen Eigenschaften dieser Lösungen sind

- die exponentielle Abhängigkeit der erzeugten Intensität I_I von der Säulentiefe Nz auch im Sättigungsbereich
- das Auftreten eines Dips in der Abhängigkeit $I_I(\Delta)$ an der Stelle der Zweiphotonenresonanz $\Delta = 0$ für Sättigungsparameter $S > 1$ (vgl. Fig. 14).

Da dieses Frequenzverhalten grundsätzlich verschieden von dem der OPSE ist, läßt ein Vergleich mit den numerischen Modellrechnungen und dem Experiment (3.3.2.) in diesem Punkt eine Analyse des Zusammenwirkens der Elementarprozesse bei der Idlererzeugung zu.

3.1.4. Numerische Prozedur

Zur numerischen Lösung des Gleichungssystems (45/46) wurden verschiedene in den Programmbibliotheken des Rechenzentrums der Universität Düsseldorf vorhandenen Routinen getestet. Das Unterprogramm D02AJF aus der kommerziellen Programmbibliothek NAG erwies sich als am besten an die mathematische Struktur der Gleichungen angepaßt. Es ist eine Routine zur Integration eines Systems von gewöhnlichen Differenzialgleichungen, die auf der Gear'schen Methode nach Craigie /72/ in der von Krogh /73/ beschriebenen Variante beruht.

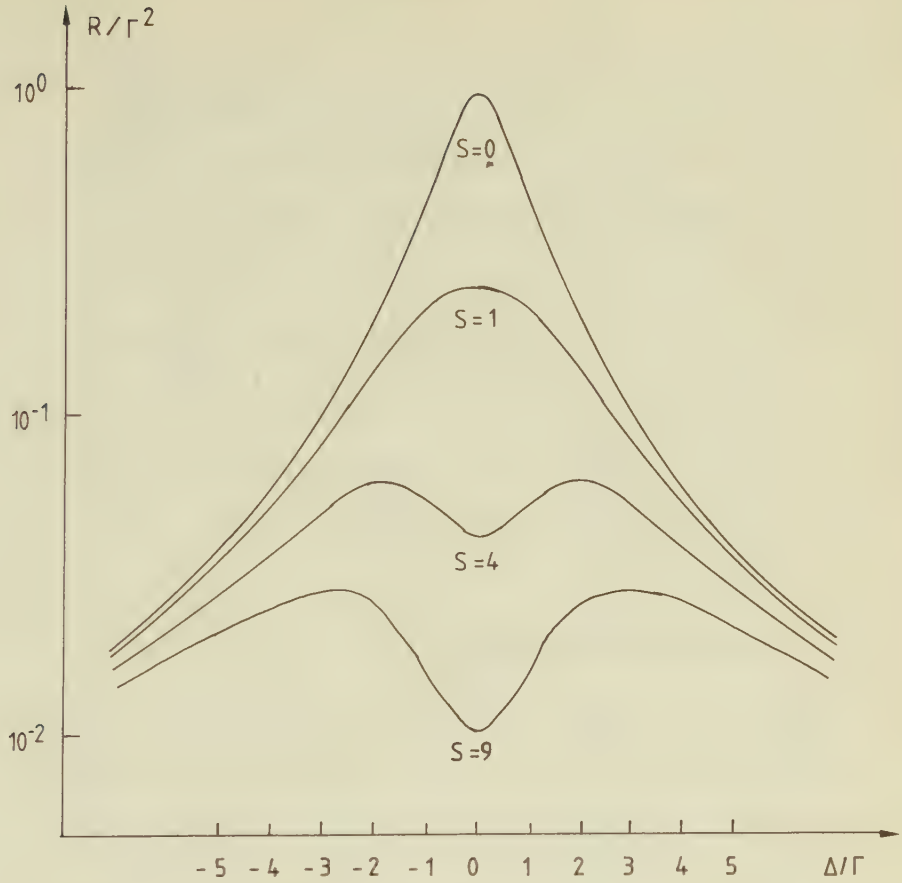

Fig. 14: Analytische Abschätzungen zu den Elementarprozessen bei der Idlererzeugung:

Parametrische Vierwellenkopplung.

Abhängigkeit des Resonanzterms $R = \frac{\Delta^2 + \Gamma^2}{\Delta^2 + \Gamma^2 (1 + S)^2}$ im gain

von der Resonanzabweichung der Primärstrahlung $\Delta = \Omega_{31} - 2\omega_L$ für verschiedene Werte des Sättigungsparameters S.

Die Subroutine wählt selbständig variable Schrittweiten für die Integration aufgrund vom Anwender vorgegebener lokaler Fehlergrenzen. In ersten Testläufen auf der DVA Telefunken TR 445 wurden geeignete lokale Fehlergrenzen ermittelt, die sinnvolle globale Fehler bei hinreichend kurzen Rechenzeiten ermöglichen. Die eigentlichen Rechnungen mit einer systematischen Variation der Parameter Primärleistung, Resonanzabweichung und Cadmiumteilchendichte wurden auf der DVA Siemens 7.760 durchgeführt, die im Gegensatz zur TR 445 keine kurzfristigen Änderungen der Programme ermöglicht, in der Rechenzeit aber um etwa einen Faktor 4 schneller als die TR 445 ist.

3.2. Experimenteller Aufbau

Der experimentelle Aufbau (Fig. 15) wurde ähnlich wie bei den Barium-Experimenten (vgl. 2.1.) gewählt. Zur Erzeugung des Cadmiumdampfes bzw. homogener Cadmium-Edelgasgemische war aufgrund der bereits oben erwähnten Schwierigkeiten beim Betrieb eines Cadmium-Heatpipe-Ofens die Konstruktion einer homogen geheizten Edelstahlzelle /G27/ notwendig. Im Gegensatz zu den Barium-Experimenten war beim Cadmium aufgrund der günstigeren spektralen Lage (1040 nm) eine detaillierte Vermessung der Idlerkomponente möglich. Im Nachweissystem wurde ein Microcomputer /G28/ zur automatischen Meßwerterfassung eingesetzt, der außerdem zur Ablaufsteuerung des Experiments diente. Neben den bereits

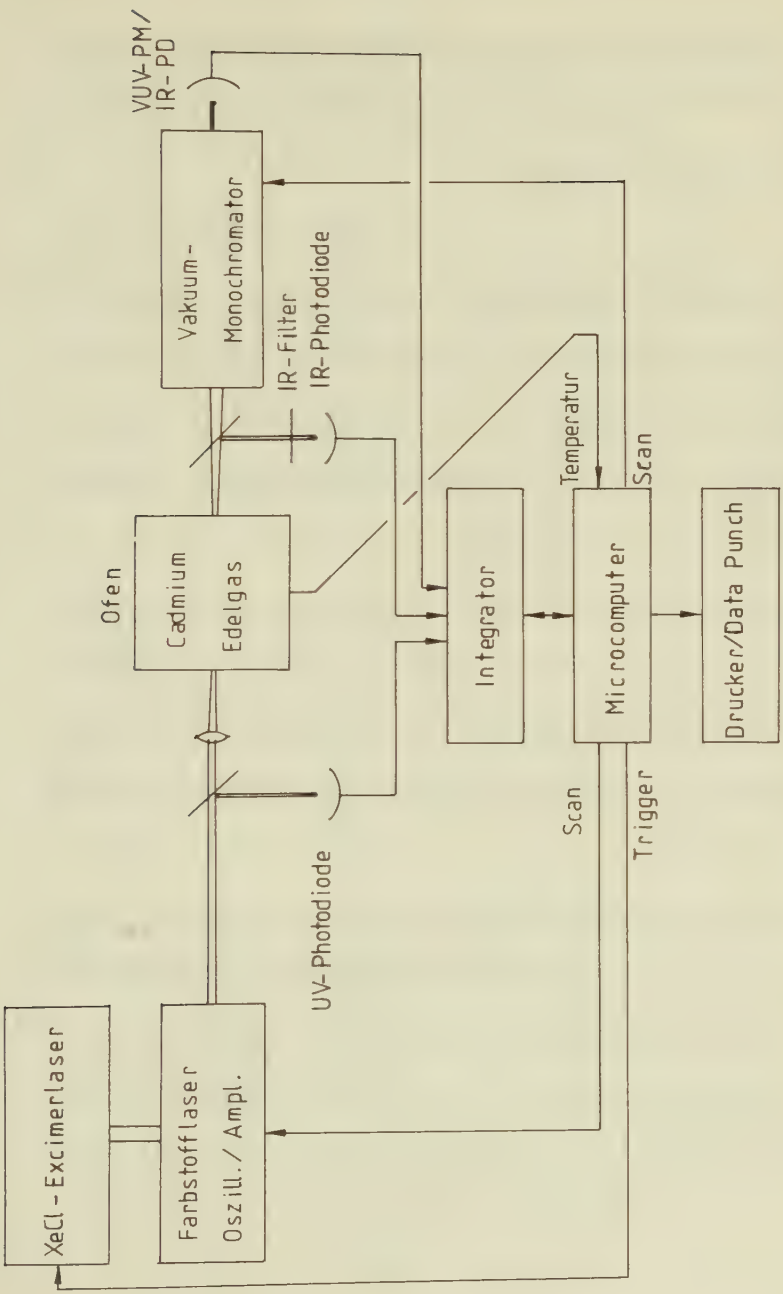

Fig. 15: Experimenteller Aufbau für die Untersuchungen am Cadmium.

unter 2.1. beschriebenen zeitintegrierten Messungen wurden zeitaufgelöste Messungen der Idlerkomponente durchgeführt.

3.2.1. Der Primärlaser

Als Primärlaser diente der bereits unter 2.1.1. beschriebene Farbstofflaser /G3/. Zur Abstimmung auf die Zweiphotonenresonanz $5s6s\,^1S_0$ wurde er bei einer Wellenlänge von 375 nm mit dem Farbstoff Bibuq zu 0,4 g/l in Cyclohexan betrieben. Bei ca. 6 ns Pulsdauer und einer Bandbreite von ca. 20 pm entsprechend $2{,}6 \times 10^{11}$ Hz konnten routinemäßig Leistungen bis etwa 500 kW erzielt werden.

Diese Konzeption eines Excimer-gepumpten UV-Farbstofflasers hat sich als deutlich effizienter erwiesen als das Pumpen eines UV-Farbstoffes mit einem frequenzvervierfachten Nd:Yag-Laser. Andererseits ist es technologisch weit weniger aufwendig als die Frequenzverdopplung eines Farbstofflasers im Sichtbaren.

Für einzelne Messungen wurde der Laser mit einem zusätzlichen Etalon /G29/ auf eine Bandbreite von ca. 5 pm, entsprechend 6×10^{10} Hz eingeengt. In Vorversuchen wurde der Laser stark in den Cadmiumdampf fokussiert mit einer Linse f = 15 cm auf eine Strahltaille von ca. 10 µm (vgl. 2.1.1.). Die quantitativen Meßserien wurden bei schwacher Fokussierung durchgeführt (f = 50 cm, w_0 = 0,2 mm), da einerseits bei starker

Fokussierung Beschädigungen an den Fenstern der Cadmium-zelle auftraten, andererseits im Experiment dem theoretischen Ansatz ebener Wellen nahegekommen werden sollte.

3.2.2. Die Cadmium-Zelle

Zur Erzeugung homogener Cadmium-Edelgasgemische wurde eine homogen bis ca. 500°C heizbare Zelle aus Edelstahl /G27/ konstruiert (Fig. 16). Die Fenster wurden mit kommerziellen Kupfer-Asbest-Ringen /G30/ gegenüber dem Zellenkorpus abgedichtet, wegen der dabei auftretenden mechanischen Belastung erschien eine Fensterdicke von 5 mm angebracht. Als Fenstermaterial wurde am Ausgang Magnesiumfluorid /G31/ gewählt, um die Transmission bei der Wellenlänge der Summenfrequenzkomponente (159 nm) zu erreichen. Am Eingang wurde die Glassorte "Tempax" gewählt, die temperaturbeständig bis über 500°C ist, bei 5 mm Dicke eine Transmission von ca, 90 % bei der Laserwellenlänge hat und sich als resistent gegenüber Cadmiumdampf erwies.

Eine Wasserkühlung am oberen Ende der Zelle verhinderte das Eindringen des Metalldampfes in die Zuleitung zum Gasreservoir, zum Manometer sowie zum Vakuumsystem. Zur thermischen Isolierung der Fenster wurde am Eingang eine Luftschleuse mit zweiten kaltem Tempax-Fenster eingesetzt, am Ausgang sorgte ein 200 mm langes,evakuiertes Edelstahlrohr als Übergangsstück zum Vakuumspektrographen /G32/ für einen kleinen

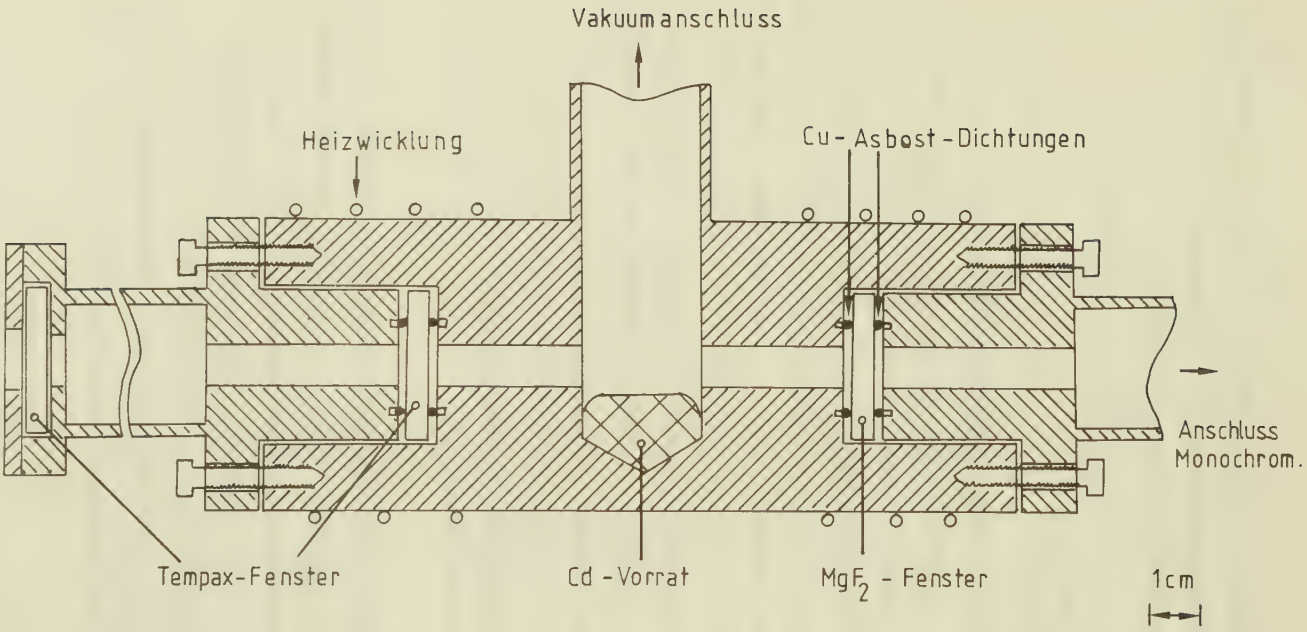

Fig. 16: Konstruktion der Zelle zur Erzeugung von Cadmium-Edelgas-Gemischen.

Temperaturgradienten. Die Außenwand der gesamten Zelle sowie der Luftschleuse am Eingang und des Vakuumanschlußrohres am Ausgang wurde gegenüber der Umgebung mit Aluminiumoxyd-Keramikwolle /G35/ isoliert.

Die Zelle wurde konventionell mit einem Mantelheizelement /G33/ beheizt; um eine homogene Temperatur zu erzielen, ragte die Heizzone um 30 mm zu beiden Seiten über die Fenster hinaus. Die zeitliche Stabilisierung der Temperatur erfolgte mit einem Regler /G34/. Zur Temperaturmessung diente ein NiCr-Ni-Thermoelement, daß an der Außenwand der Zelle mittig in deutlichem Abstand von der Heizspirale aufgepunktet wurde.

Am Boden der Zelle wurde eine Vertiefung zur Aufnahme des Cadmiumvorrats (ca. 30 g) eingelassen. Die Zelle wurde mit typisch 800 Torr Helium, das als Buffergas und zur Verbesserung der Phasenanpassung diente, betrieben. Zur Druckmessung wurde ein Rohrfedermanometer /G36/ verwendet. Aufgrund der Dampfdruckkurve /50/ ergeben sich die erreichbaren Cadmiumteilchendichten zu $2 \times 10^{17} cm^{-3}$.

3.2.3. Das Nachweissystem

Im Strahlengang hinter der Cadmiumzelle wurde unter 45° eine MgF_2-Platte eingesetzt, mit der ein Teil der Strahlung für direkte Messungen unter Umgehung des Vakuumspektrographen

ausgespiegelt wurde. Hier erfolgten

- die zeitintegrierten Relativmessungen der Idlerkomponente, bei denen die Primärstrahlung mit einem Farbglasfilter /G37/ blockiert und zum Nachweis eine Silizium-Photodiode /G38/ verwendet wurde.
- die zeitintegrierten Absolutmessungen der Idlerkomponente mit Farbglasfilter /G37/ und einem pyroelektrischen Detektor /G39/. Die Signale des Detektors wurden mit einem hochempfindlichen Oszillographen /G40/ dargestellt.
- die zeitaufgelösten Relativmessungen der Idlerkomponente mit Farbglasfilter /G37/ und einer schnellen Siliziumphotodiode /G34/ (Zeitauflösung in der gewählten Beschaltung<2ns). Die Signale der Diode wurden von einem schnellen Oszillographen /G26/ aufgenommen und mit Hilfe einer Thomson-Kamera und einem Microcomputersystem digital abgespeichert /66/.
- die zeitintegrierten Absolutmessungen der Summenfrequenzkomponente bei 159 nm mit einem geeichten solar blinden Photomultiplier /G41/ bzw. /G42/. Die Primärstrahlung wurde hierbei mit einem Metallschicht-Interferenzfilter /G43/ bekannter Transmission blockiert.
- die zeitintegrierten Relativmessungen der transmittierten Primärstrahlung mit einer Siliziumphotodiode /G5/.

Die durch den MgF_2-Teiler transmittierte Strahlung wurde zur Vermessung der einzelnen spektralen Komponenten von einem 0,75 m Vakuum-Gitterspektrographen /G35/ spektral zerlegt.

Zum Nachweis der im VUV erzeugten Komponenten wurde ein bei 200 nm geblaztes Gitter verwendet. Das Spektrometer wurde hier bei großer Spaltbreite (3 mm entspr. 3 nm Apparatebreite) betrieben, und als Detektor diente ein solar blinder Photomultiplier /G41/.

In diesem Aufbau wurden auch die Relativmessungen der Summenfrequenzkomponente bei 159 nm synchron zu den Relativmessungen der Idlerkomponente durchgeführt. Zur Aufnahme der spektralen Verteilung der Idlerkomponente im nahen IR diente ein bei 1850 nm geblaztes Gitter. Um die notwendige spektrale Auflösung zu erzielen, wurden die Spalte auf 20 µm zugezogen. Als Detektor wurde eine Silizium-Photodiode /G38/ verwendet.

Kontrollmessungen des Laserspektrums vor den jeweiligen Experimenten wurden mit einem 1 m Gitterspektrometer /G6/ in der dritten Ordnung (Auflösung $\leq$ 5 pm) durchgeführt. Ein typisches Spektrum bei Betrieb des Lasers ohne Intracavity-Etalon zeigt Fig. 17.

Für die zeitintegrierten Relativmessungen wurden die Signale der Detektoren von einem Integrator mit Zeitfenster /G8/ aufgenommen.

Die Linearität der Kombination Photomultiplier /G41/ - Integrator /G8/ im gesamten Meßbereich wurde nachgewiesen. Hierzu wurde kohärente VUV-Strahlung bei 139 nm verwendet, die

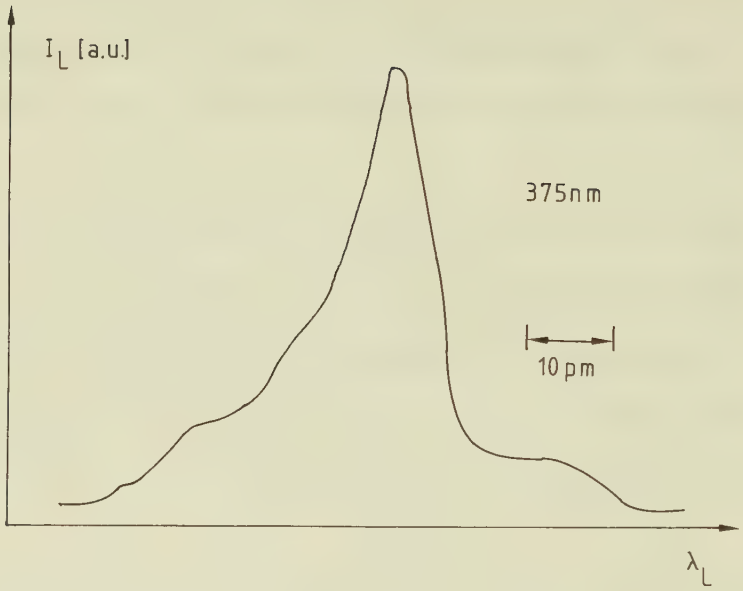

Fig. 17: Spektrale Verteilung der Laserstrahlung von /G3/.

in einem parallel zur vorliegenden Arbeit durchgeführten Experiment erzeugt wurde (zweiphotonenresonante Summenfrequenzmischung $2\omega_{L1} + \omega_{L2}$ zweier Farbstofflaser in Cadmiumdampf /G69/. Zur kontinuierlichen Abschwächung der VUV-Strahlung diente eine 2 cm lange evakuierbare Zelle, die mit Sauerstoff im Druckbereich $p(O_2) \leq 10$ mbar gefüllt wurde. Die transmittierte Strahlung wurde mit der Kombination Photomultiplier /G41/ - Integrator /G8/ in Abhängigkeit vom Sauerstoffdruck gemessen (Fig. 18). Die Linearität der Anzeige wurde dadurch nachgewiesen, daß die Meßkurve im gesamten Bereich den vom Beer'schen Gesetz erwarteten exponentiellen Zusammenhang liefert.

3.2.4. Die Microcomputersteuerung

Zur Steuerung des Experimentes sowie zur Meßwertverarbeitung diente ein Microcomputersystem /G28/ basierend auf der MPU Motorola 6800 (Fig. 19). Mit dem Microcomputersystem ließen sich einzelne Meßzyklen mit einer variablen Anzahl von Laserpulsen initiieren, während denen die Versuchsparameter konstant gelassen wurden.

Die von den Analog-Ausgängen der Integratorkanäle übernommenen Meßwerte der Einzelpulse wurden nach AD-Wandlung abgespeichert. Am Ende eines Meßzyklus wurden die Mittelwerte ausgedruckt, die Einzelwerte konnten auf einem angeschlossenen Lochstreifenstanzer zur späteren detaillierten Analyse ausgegeben werden.

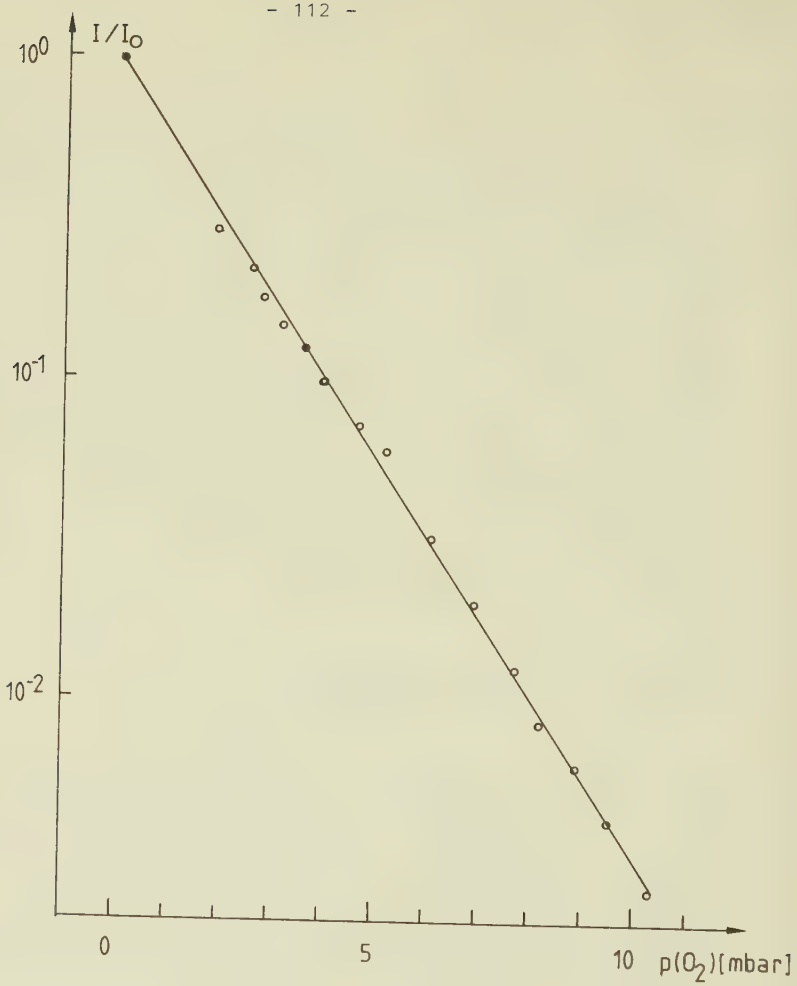

Fig. 18: Zur Linearität des Photomultipliers /G41/.

Abhängigkeit der durch eine Sauerstoffzelle transmittierten VUV-Strahlung vom Sauerstoffdruck.

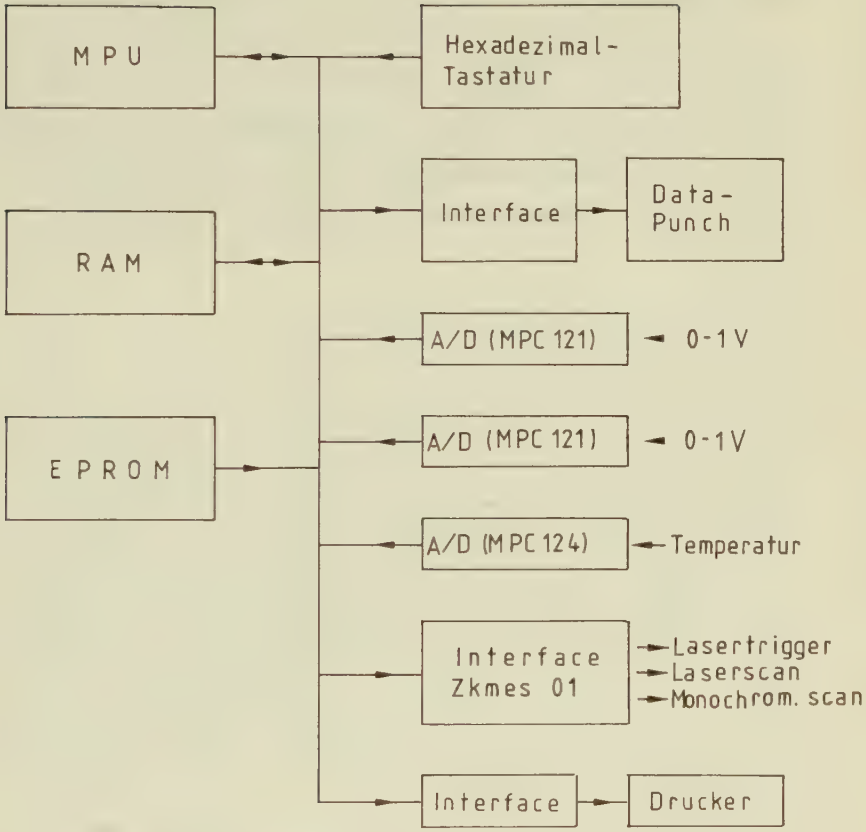

Fig. 19: Blockschaltbild des Microcomputers für die Cadmiumexperimente.

Die Meßzyklen wurden auch in umfangreicheren automatisierten Meßprogrammen aufgerufen, in denen die Laserwellenlänge bzw. die Spektrometerwellenlänge vom Microcomputer über Schrittmotorsteuerung in variablen Schrittweiten variiert werden konnte. Darüber hinaus wurden Temperaturmessungen der Cadmiumzelle vom Microcomputer initiiert, so daß jedem Meßzyklus automatisch die entsprechende Zellentemperatur zugeordnet wurde.

3.3. Diskussion der Ergebnisse

In Vorversuchen wurde der Farbstofflaser bei Abstimmung auf die Zweiphotonenresonanz $5s6s\,^1S_0$ stark in den Cadmiumdampf fokussiert auf eine Strahltaille von 10 µm (vgl. 3.2.1.) und Übersichtsspektren der erzeugten Strahlung im Bereich 120 - 230 nm wurden aufgenommen. In schwacher Fokussierung wurden dann quantitative Messungen der Idlerkomponente bei 1040 nm und der Summenfrequenzkomponente bei 159 nm unter Variation der Parameter Laserintensität, Resonanzabweichung und Cadmiumteilchendichte durchgeführt.

3.3.1. Frequenzverdreifachung und andere Kopplungsschemata

Bei starker Fokussierung des Farbstofflasers wurde die durch Frequenzverdreifachung erzeugte Strahlung bei 125 nm nachgewiesen. Das Signallevel lag nur knapp oberhalb der Nachweisgrenze und hatte ein Maximum bei einer Zellentemperatur von

ca. 400°C. Das Absinken des Signallevels zu höheren Temperaturen hin ist bei den entsprechenden Cadmiumteilchendichten aufgrund der Phasenanpassungsbedingung nicht zu verstehen. Es sind wahrscheinlich apparative Effekte für dieses Phänomen verantwortlich. Denkbar wäre eine Temperaturabhängigkeit der Absorptionskante des Fenstermaterials MgF_2. Unter diesen Bedingungen wurde auf eine systematische Untersuchung der Frequenzverdreifachung verzichtet.

Ähnlich wie bei den Untersuchungen am Barium (vgl. 2.2.3.) wurden auch bei den Cadmium-Experimenten außer der Frequenzverdreifachung und der Summenfrequenzmischung zweier Laserphotonen mit einem Idlerphoton bei Abstimmung auf die Zweiphotonenresonanz $5s6s\,^1S_0$ kohärente Komponenten nachgewiesen, deren Erzeugung auf anderen Kopplungsschemata basiert. Aufgrund der Empfindlichkeitskurve des verwendeten Photomultipliers waren die Untersuchungen auf den Spektralbereich 120 - 230 nm beschränkt.

Frequenzverdopplung

Die durch zweiphotonenresonante Frequenzverdopplung bei 188 nm erzeugte Strahlung wurde nachgewiesen. Bemerkenswert ist hier, ebenso wie bei den Untersuchungen am Barium (vgl. 2.2.3.), daß der zugehörige Einphotonenübergang $5s6s\,^1S_0 \nrightarrow 5s^2\,^1S_0$ in allen Multipolnäherungen verboten ist. Ebenso wie beim Barium ist auch hier zu vermuten, daß am Erzeugungsprozess statische

Mikrofelder beteiligt sind.

Antistokes-Ramanstreuung

Kohärente Linienstrahlung wurde bei 162 nm bzw. 178 nm erzeugt. Innerhalb der Meßgenauigkeit von ca. 1 nm fallen diese Linien mit den Antistokes-Ramanübergängen $5s7p\,^1P_1 \rightarrow 5s5p\,^3P_1$ bzw. $5s6p\,^1P_1 \rightarrow 5s5p\,^3P_1$, von einem Laserphoton gepumpt, überein. Der Ausgangszustand $5s6s\,^1P_1$ wird in der hier gewählten theoretischen Behandlung als nennenswert besetzt angenommen, so daß der Nachweis der zugehörigen Ramankomponente nicht im Widerspruch zum in 1.5. dargestellten Formalismus steht. Die Tatsache, daß auch eine Ramankomponente vom Zustand $5s7p\,^1P_1$ ausgehend auftritt, deutet auf Umbesetzungsmechanismen hin, die im Rahmen der vorliegenden Arbeit nicht berücksichtigt wurden. In diesem Zusammenhang sei auf den Abschnitt "Vierniveausystem" in 3.1.1. verwiesen. Einschränkend muß allerdings gesagt werden, daß die Ramankomponente bei 162 nm etwa eine Größenordnung schwächer als die Ramankomponente bei 178 nm gemessen wurde und daß der Nachweis nur bei starker Fokussierung erfolgte, also unter Bedingungen, unter denen die in 3.1. beschriebene Rechnung nicht angewandt worden ist.

Nah-resonante Emissionen

Wie auch bei den Barium-Experimenten wurden in der Nähe erlaubter Dipolübergänge, bei $5s6p\,^1P_1 \rightarrow 5s^2\,^1S_0$ (167 nm) und

$5s7p\,^1P_1 \rightarrow 5s^2\,^1S_0$ (153 nm) kohärente Emissionen nachgewiesen. Auch hier ist der Ursprung ungeklärt. Ebenso ist der Kopplungsprozess ungewiß, der einer bei 143 nm nachgewiesenen Komponente zugrunde liegt.

3.3.2. Summenfrequenzmischung zweier Laserphotonen mit einem Idlerphoton

Bei der Idlerkomponente (1040 nm) und der Summenfrequenzkomponente (159 nm) wurden quantitative Untersuchungen durchgeführt, die im folgenden durch Vergleich mit den in 3.1. beschriebenen Modellrechnungen nach dem in 1.5. dargestellten Formalismus interpretiert werden. Der Vergleich wurde bezüglich der relativen Abhängigkeiten der erzeugten Komponenten von Cadmiumteilchendichte, Intensität und Resonanzabweichung der Primärstrahlung durchgeführt; d.h. es wurden jeweils Fits im Absolutlevel vorgenommen. Ein Vergleich von absoluten gemessenen mit berechneten Intensitäten erfolgt in 3.3.3.

Schwächung des Laserfeldes

Zur Überprüfung der Gültigkeit der Vernachlässigung der "pump depletion" in den Rechnungen (vgl. 3.1.1.) wurde zunächst versucht, eine Schwächung der Primärlaserstrahlung im Cadmiumdampf bei Abstimmung auf die Zweiphotonenresonanz nachzuweisen. Bei einer Cadmiumteilchendichte von $1 \times 10^{17} cm^{-3}$ und einer Primärintensität von 1×10^{-8} W/cm^2 wurde hierzu der Laser über einen Bereich von $\Delta\omega_L \cong 3 \times 10^{12}$ Hz über die

Zweiphotonenresonanz verstimmt und dabei synchron die relative Laserpulsenergie vor und nach der Zelle gemessen. Bei einer Meßgenauigkeit von 2 % war das Verhältnis der Signale über den gesamten Bereich konstant, so daß eine Schwächung des Laserfeldes durch Zweiphotonenabsorption nicht nachgewiesen werden konnte. Die gemessene untere Grenze der Transmission von 98 % ist in Übereinstimmung mit der Abschätzung in 3.1.1.

Spektrale Verteilung der Idlerkomponente

Zur Rechtfertigung des Ansatzes für die nichtlinearen Suszeptibilitäten in 1.5.3. wurde die spektrale Verteilung der Idlerkomponente bei verschiedenen Resonanzabweichungen des Lasers gemessen. Hierzu wurde der Laser zum einen auf maximale integrale Leistung bei der Idlerkomponente abgestimmt, zum anderen 30 pm (4×10^{11} Hz) ins Langwellige verschoben. Die zugehörigen IR-Spektren zeigt Fig. 20, wobei das nichtresonant erzeugte Spektrum um einen Faktor 10 im Intensitätsmaßstab angehoben wurde.

Bei einer Idlerkomponente, die in ihrem Frequenzverhalten dem Laser folgt, wäre eine Verschiebung der Mittenfrequenzen um 8×10^{11} Hz (460 pm) zu erwarten. Die gemessenen Mittenfrequenzen stimmen aber bis auf 10 pm (bedingt durch die Meßungenauigkeit) überein. Der Ansatz einer festfrequenten Idlerkomponente ist daher aufgrund der Messung gerechtfertigt.

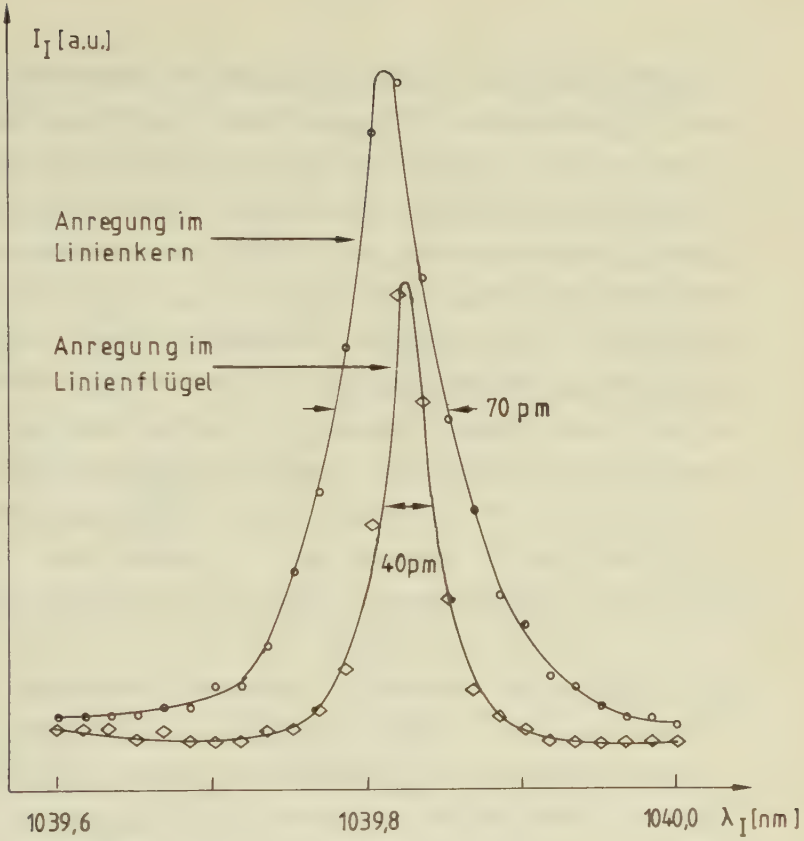

Fig. 20: Summenfrequenzmischung $\omega_F = 2\omega_L + \omega_I$ zweier Laserphotonen ω_L mit einem intern erzeugten Idlerphoton ω_I am Cadmium.

Spektrale Verteilung der Idlerstrahlung bei verschiedenen Resonanzabweichungen $\Delta = \Omega_{31} - 2\omega_L$ der Primärstrahlung.

Dies Ergebnis steht im Gegensatz zu den Untersuchungen von Reif /7/, /62/, Hartig /21/ und Schöne /22/. Es ist gleichbedeutend damit, daß unter den hier vorliegenden experimentellen Bedingungen OPSE der dominierende Erzeugungsprozess ist und die parametrische Vierwellenkopplung allenfalls als Korrekturterm betrachtet werden kann (vgl. 1.5.3.). Ein Vergleich der vorliegenden Arbeit mit denen von Schöne und Hartig ist nur bedingt möglich, da sie am Natrium, einem Einelektronensystem mit Duplett-Termstruktur und bei um etwa eine Größenordnung kleinerer Primärleistung durchgeführt worden sind. Die Untersuchungen von Reif erfolgten am Zweielektronensystem Strontium bei zur vorliegenden Arbeit vergleichbaren Primärleistungen. Auffällig ist, daß bei Reif -wie auch bei Schöne und Hartig- kein oder nur wenig Fremdgas dem Metalldampf beigemischt wurde. Die Beimischung von Fremdgas führt i.a. zu einer günstigeren Anpassung der atomaren Linienbreiten an die Laserbandbreite und so zu einer höheren Zweiphotonenabsorptionsrate auch im Linienflügel, die zur Initiierung der OPSE notwendig ist. Daß Reif dennoch keine OPSE beobachtete, bleibt unverständlich, zumal da er Sättigungseffekte nachweist, die eindeutig auf eine nennenswerte Besetzung der Zweiphotonenresonanz zurückzuführen sind.

Bemerkenswert ist auch die Linienverbreiterung, die bei resonanter gegenüber nah-resonanter Anregung gemessen wurde (Fig. 20) Der Trend kann durch das Verhalten der reinen OPSE (vgl. 3.1.2.),

dem dominierenden Erzeugungsprozess, erklärt werden. Im Bereich großer Resonanzabweichungen, d.h. kleiner Pumpraten, ist die stimulierte Emission ungesättigt und das Linienprofil des Emissionsquerschnittes σ_I geht exponentiell in die erzeugte Intensität ein (vgl. Gl.87). Hier ist eine Verschmälerung des gemessenen Linienprofils (gain narrowing) zu erwarten. Bei Anregung in der Linienmitte ist die stimulierte Emission gesättigt (vgl. Gl. 90). Der Abbau der Besetzungsinversion führt hier zur gleichen Verbreiterung im Emissionslinienprofil, wie sie als Sättigungsverbreiterung der Absorption bei reduzierter Besetzungsdifferenz bekannt ist /74/.

Abhängigkeit der Idler-Intensität von der Cadmiumteilchendichte

Die Abhängigkeit der Idler-Intensität von der Cadmiumteilchendichte wurde bei einer Primärintensität von 3×10^7 W/cm^2 gemessen. Der Laser wurde hierzu auf maximales Signal bei der Idlerkomponente abgestimmt, was nicht exakt mit der Zweiphotonenresonanz übereinstimmt, wie anhand anderer Messungen gezeigt werden wird. Da die Zelle mit gesättigtem Cadmiumdampf betrieben wurde, erfolgte die Variation der Teilchendichte über eine Variation der Zellentemperatur.

Eine Meßkurve zeigt Fig. 21. Die Kurve hat einen etwa linearen Anstieg und ist von Oszillationen überlagert, die typisch für eine Phasenfehlanpassung sind. Da die OPSE keiner Phasenanpassungsbedingung genügt, rühren die Oszillationen vom para-

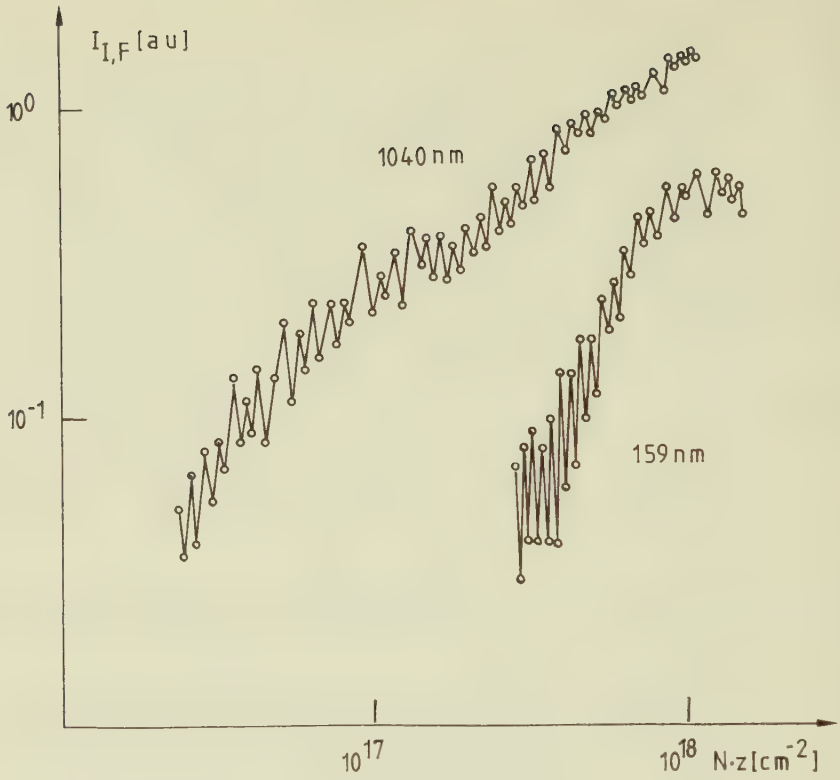

Fig. 21: Summenfrequenzmischung $\omega_F = 2\omega_L + \omega_I$ zweier Laserphotonen ω_L mit einem intern erzeugten Idlerphoton ω_I am Cadmium.

Gemessene relative Abhängigkeit der Idler- und Summenfrequenzintensität von der Säulentiefe Nz.

$I_L = 3 \cdot 10^7$ W/cm^2.

metrischen Anteil an der Erzeugung der Idlerkomponente her. Das Auftreten der Oszillationen stützt zusätzlich die Annahme einer festfrequenten Idlerkomponente, da eine frequenzvariable Idlerkomponente in der Phase angepaßt wäre (vgl. 1.5.3.).

In den Modellrechnungen wurden Phasenanpassungseffekte bei der parametrischen Vierwellenkopplung vernachlässigt. Zum Vergleich mit den Rechnungen wurde daher eine geglättete Kurve der Meßwerte herangezogen, wie in Fig. 22 zusammen mit einer im Intensitätslevel gefitteten berechneten Kurve dargestellt ist. Ein Vergleich gemessener mit berechneten Absolutleistungen wird in 3.3.3. gezogen. Betont werden muß, daß die Kurve bei einer Resonanzabweichung $\Delta \cong 2{,}5 \times 10^{11}$ Hz, entsprechend etwa einer Laserbandbreite, berechnet wurde. Der Wert entspricht zum einen ungefähr den experimentellen Gegebenheiten (s.o.), zum anderen wurde bei dieser Resonanzabweichung in allen berechneten Abhängigkeiten die beste Übereinstimmung mit den Experimenten erzielt, bei denen der Primärlaser auf das Maximum der Idleremission abgestimmt war (vgl. Anhang B).

In der Rechnung wird die nahezu lineare Abhängigkeit der Idler-Intensität von der Cadmiumteilchendichte (bzw. Säulentiefe) gut reproduziert. Dieses Verhalten ist dadurch zu verstehen, daß die Idlerkomponente im wesentlichen durch OPSE erzeugt wird. Bei reiner OPSE wäre ein streng linearer

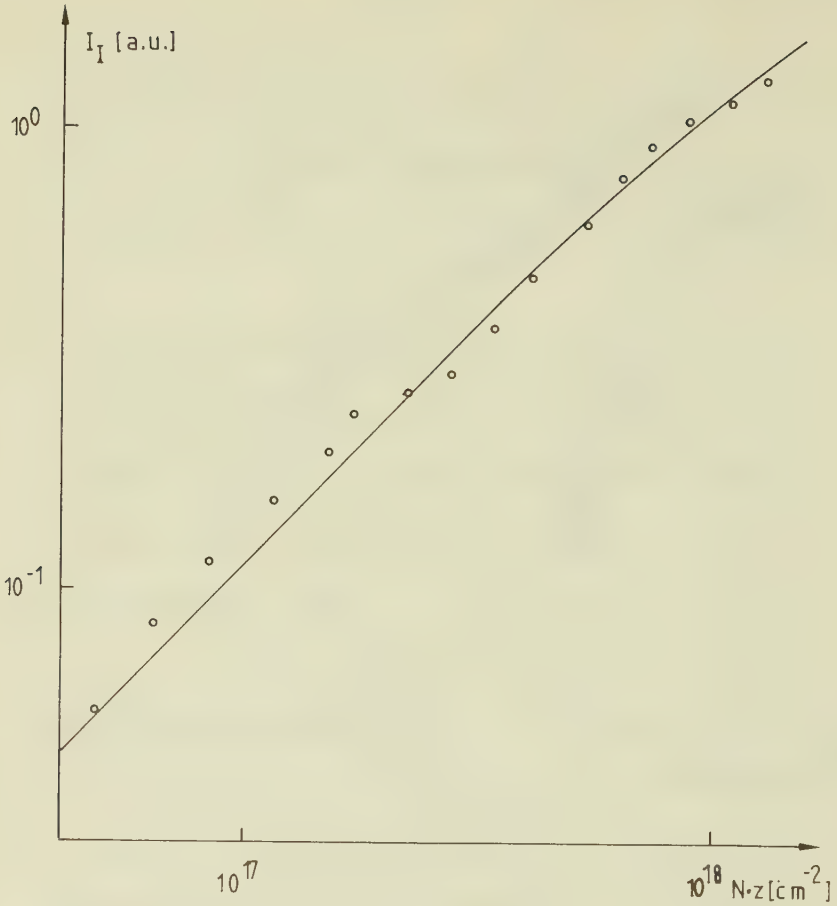

Fig. 22: Summenfrequenzmischung $\omega_F = 2\omega_L + \omega_I$ zweier Laserphotonen ω_L mit einem intern erzeugten Idlerphoton ω_I am Cadmium.

Abhängigkeit der erzeugten Idlerintensität I_I von der Säulentiefe Nz. Vergleich von geglätteten Meßwerten mit der Rechnung. $I_L = 3 \times 10^7$ W/cm^2, $\Delta = 2{,}5 \times 20^{11}$ Hz (vgl. Anhang B).

Zusammenhang im Sättigungsbereich zu erwarten (vgl. 3.1.2., Gl. 90). Die Tatsache, daß der Einfluß der parametrischen Erzeugung, die für sich genommen einen exponentiellen Zusammenhang liefert (vgl. Gl. 95/96), auch in der numerischen Rechnung zu einer schwächer als linearen Abhängigkeit führt, kann durch einfache Betrachtungen nicht erklärt werden.

Abhängigkeit der Summenfrequenzkomponente von der Cadmiumteilchendichte

Die Abhängigkeit der Intensität der Summenfrequenzkomponente von der Cadmiumteilchendichte wurde unter gleichen Bedingungen wie bei der Idlerkomponente gemessen. Eine Meßkurve ist in Fig. 21 zusammen mit der entsprechenden Kurve für die Idlerkomponente dargestellt.

Die gemessene Abhängigkeit weist einen steilen Anstieg, von Oszillationen überlagert, und ein breites Maximum bei NL ≈ 10^{18} cm^{-2} auf. Die erste Annahme, die Oszillationen seien auf Interferenzeffekte durch Phasenanpassung bei der Summenfrequenzmischung zurückzuführen, erwies sich als falsch. Das Verhältnis aus der Position des Maximums zur Oszillationsperiode, eine Größe, die allein durch die dispersiven Eigenschaften des Buffergases bestimmt wird, ergibt sich unter den vorgegebenen Bedingungen zu (s. Anhang C)

$$\frac{(N_{Cd})_{max}}{\Delta N_{Cd}} = 0,95 \qquad (98)$$

Es liegt daher nahe, die gemessenen Oszillationen direkt auf die Oszillationen der am Kopplungsprozess beteiligten Idlerkomponente zurückzuführen. Gestützt wird diese Deutung dadurch, daß die Oszillationsperioden in der gleichen Größenordnung liegen (vgl. Fig. 21).

Die mit dem Gleichungssystem (45/46) berechnete Abhängigkeit $I_F(NL)$ (Fig. 23)gibt die Verhältnisse der Abschätzung (Gl. 98) richtig wieder. Sie zeigt einen steilen Anstieg, ein breites Maximum und Oszillationen auf der Hochdruckseite. Im Vergleich mit der Meßkurve (vgl. Fig. 21) muß betont werden, daß zwar die Kurvenform richtig wiedergegeben wird, die Position des Maximums jedoch nur bis auf einen Faktor 5 reproduziert werden kann. Diese Diskrepanz kann auf verschiedene Ursachen zurückzuführen sein. Die Vernachlässigung des Beitrages angeregter Zustände zur Phasenfehlanpassung (vgl. 1.5.6.) ist im Rahmen der Näherung des Vierniveausystems gerechtfertigt, wie Berechnungen der Besetzungsverteilungen zeigen, die Teil der Berechnungen der erzeugten Intensitäten sind (Fig. 24). Bei einer Pumpintensität von $I_L = 3 \times 10^7$ W/cm^2 ist der Grundzustand zu weniger als 1 % entleert. Jedoch bleibt die Frage nach dem Beitrag von ionisierten Cadmiumatomen bzw. Elektronen zu den Brechungsindices offen (vgl. 3.1.1.). Unklar ist auch, inwiefern die tabellierte Cadmiumdampfdruckkurve /50/ die Verhältnisse in der im Experiment verwendeten Edelstahlzelle richtig wiedergibt (vgl. 2.1.2.).

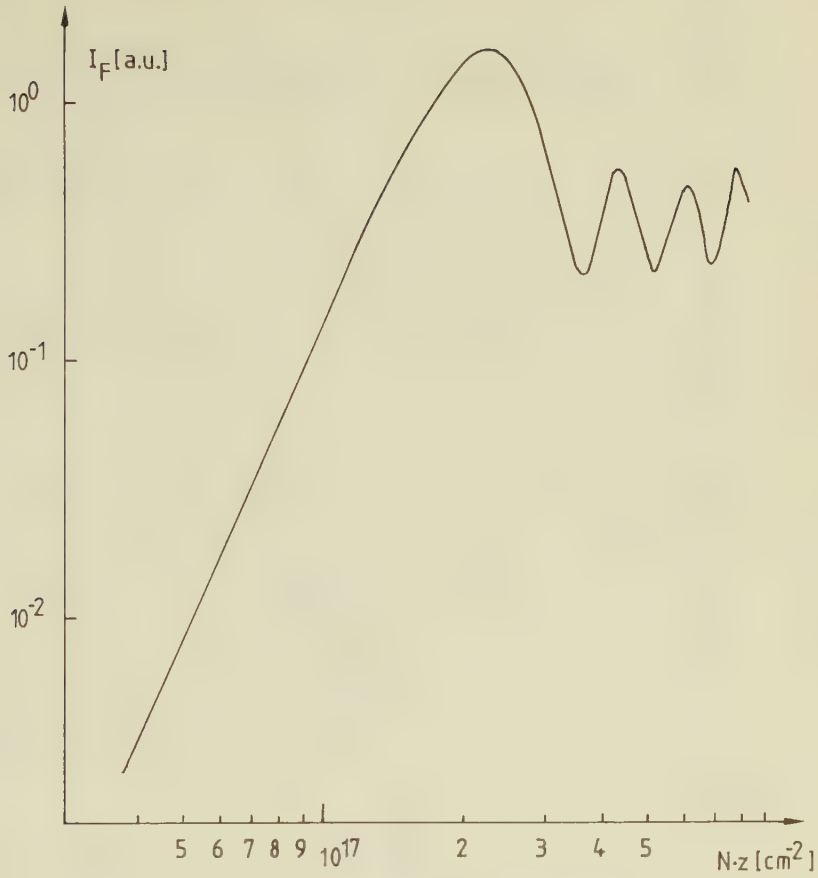

Fig. 23: Summenfrequenzmischung $\omega_F = 2\omega_L + \omega_I$ zweier Laserphotonen ω_L mit einem intern erzeugten Idlerphoton ω_I am Cadmium.

Berechnete Abhängigkeit der Summenfrequenzintensität I_F von der Säulentiefe Nz.

$I_L = 3 \times 10^7$ W/cm^2, $\Delta = 2{,}5 \times 10^{11}$ Hz.

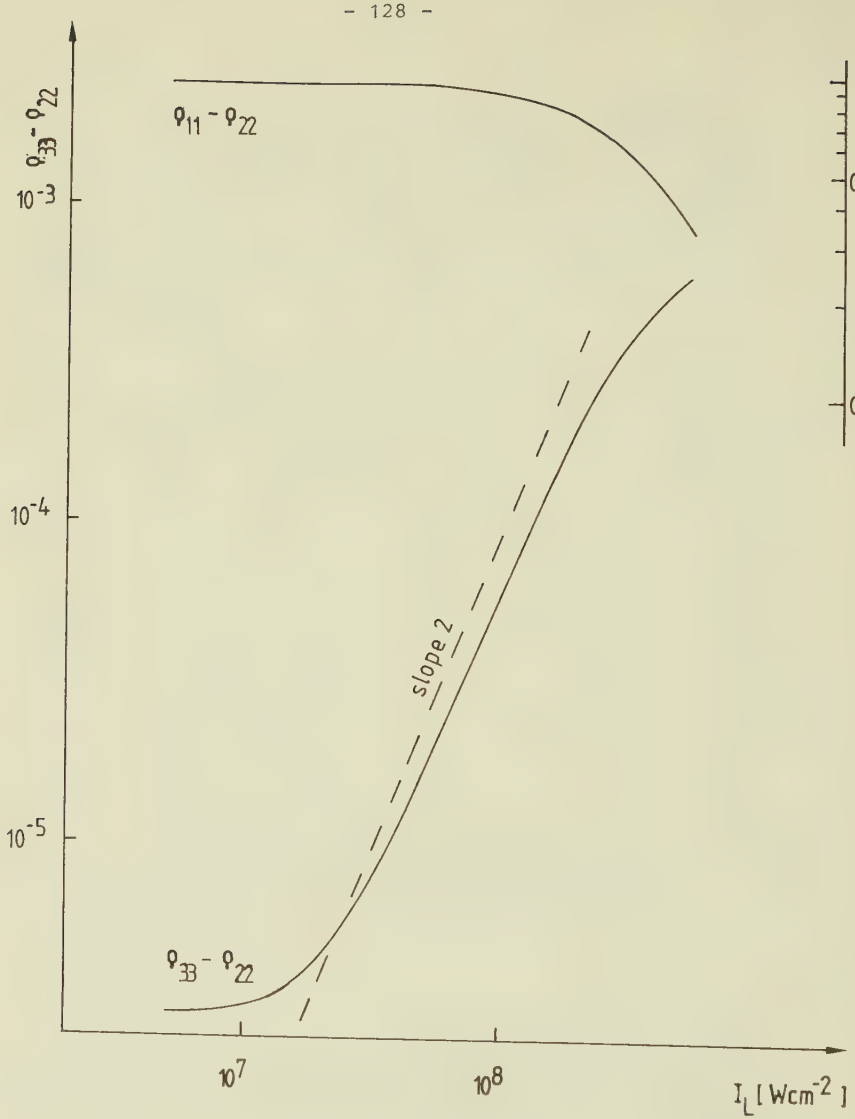

Fig. 24: Summenfrequenzmischung $\omega_F = 2\omega_L + \omega_I$ zweier Laserphotonen ω_L mit einem intern erzeugten Idlerphoton ω_I am Cadmium.

Berechnete Besetzungsverteilung in Abhängigkeit von der Primärintensität.

$N = 1 \times 10^{17}\ cm^{-3}$, $\Delta = 0$.

Abhängigkeit der Idlerkomponente von der Pumpintensität

Die Abhängigkeit der Intensität bei der Idlerfrequenz von der Primärintensität wurde bei einer Cadmiumteilchendichte von 1×10^{17} cm^{-3} und bei Abstimmung des Farbstofflasers auf das Maximum der Idleremission (s.o.) gemessen. In Fig. 25 sind die Meßwerte im Vergleich mit einer im Intensitätslevel gefitteten (s.o.), bei $\Delta = 2{,}5 \times 10^{11}$ Hz berechneten Kurve dargestellt. Im Bereich zwischen 2×10^{7} W/cm^2 und 1×10^{8} W/cm^2 wird die gemessene Abhängigkeit durch die Rechnung richtig wiedergegeben, bei kleineren Laserintensitäten verläuft die gemessene Kurve deutlich unterhalb der berechneten. Ein Grund für die Diskrepanz könnte in der stationären Behandlung liegen (vgl. 3.1.2.), die eine höhere Besetzung der Zweiphotonenresonanz in der Rechnung bewirkt als der experimentellen Situation, speziell bei kleinen Pumpintensitäten, entspricht.

Die berechnete Kurve (Fig. 25) ist auch hier vom Verhalten der OPSE geprägt. Im Bereich von Laserintensitäten unterhalb 10^{8} W/cm^2, wo der atomare Grundzustand nahezu völlig besetzt ist (vgl. Fig. 24), erhält man eine ungefähr quadratische Abhängigkeit der erzeugten Intensität von der Primärintensität, also eine lineare Abhängigkeit von der Zweiphotonenpumprate, wie bei der OPSE zu erwarten ist (vgl. Gl. 91). Konsistent hierzu ist, daß auch die Restinversion $\rho_{33} - \rho_{22}$ am Ende der Metalldampfschicht (Fig. 24) über den

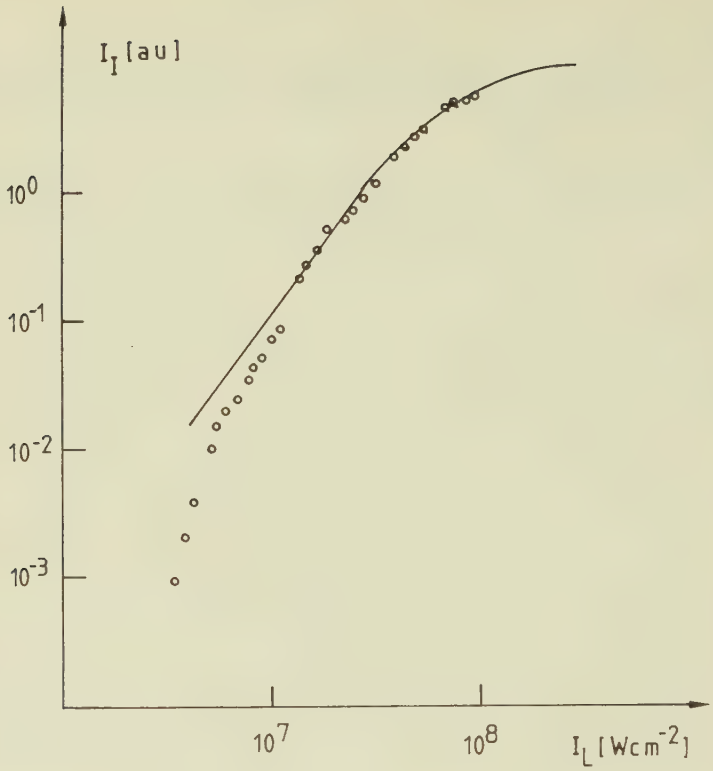

Fig. 25: Summenfrequenzmischung $\omega_F = 2\omega_L + \omega_I$ zweier Laserphotonen ω_L mit einem intern erzeugten Idlerphoton ω_I am Cadmium.

Abhängigkeit der erzeugten Idlerintensität I_I von der Primärintensität I_L. Vergleich von Messung und Rechnung.

$N = 1 \times 10^{17}$ cm^{-3}, $\Delta = 2{,}5 \times 10^{11}$ Hz (vgl. Anhang B).

Bereich 2×10^7 W/cm^2 bis 1×10^8 W/cm^2 proportional zur Zweiphotonenpumprate ist. Das Plateau bei Pumpintensitäten unterhalb 2×10^7 W/cm^2 kann im Rahmen der analytischen Abschätzungen nicht verstanden werden.

Bei Pumpintensitäten oberhalb 1×10^8 W/cm^2 setzt die Entleerung des atomaren Grundzustandes allmählich ein (Fig. 24). Die Besetzungsinversion $\rho_{33} - \rho_{22}$ hängt hier deutlich schwächer als quadratisch von der Pumpintensität ab und die berechnete Intensität der Idlerkomponente strebt einem konstanten Wert zu, wie aufgrund der analytischen Abschätzungen zur OPSE (Gl. 92) zu erwarten ist.

Die Abhängigkeit der Idlerintenstität von der Primärintensität wurde auch bei reduzierter Laserbandbreite (5 pm) gemessen. Eine entsprechende Kurve zeigt Fig. 26 zusammen mit einer Meßkurve, die bei großer Laserbandbreite (20 pm) aufgenommen wurde. Während bei einer Primärintensität von 1×10^7 W/cm^2 die erzeugte Leistung bei schmalbandiger Anregung noch um etwa einen Faktor 6 höher ist als bei Breitbandanregung, wird die Konversion bei etwa 3×10^7 W/cm^2 unabhängig von der Bandbreite.

Dieser Befund stimmt mit den Untersuchungen von Reif /62/ überein, der bei einer Variation der Laserbandbreite um etwa zwei Größenordnungen eine konstante Idlerintensität gemessen hat. Prinzipiell wäre dieser Effekt zu verstehen durch eine

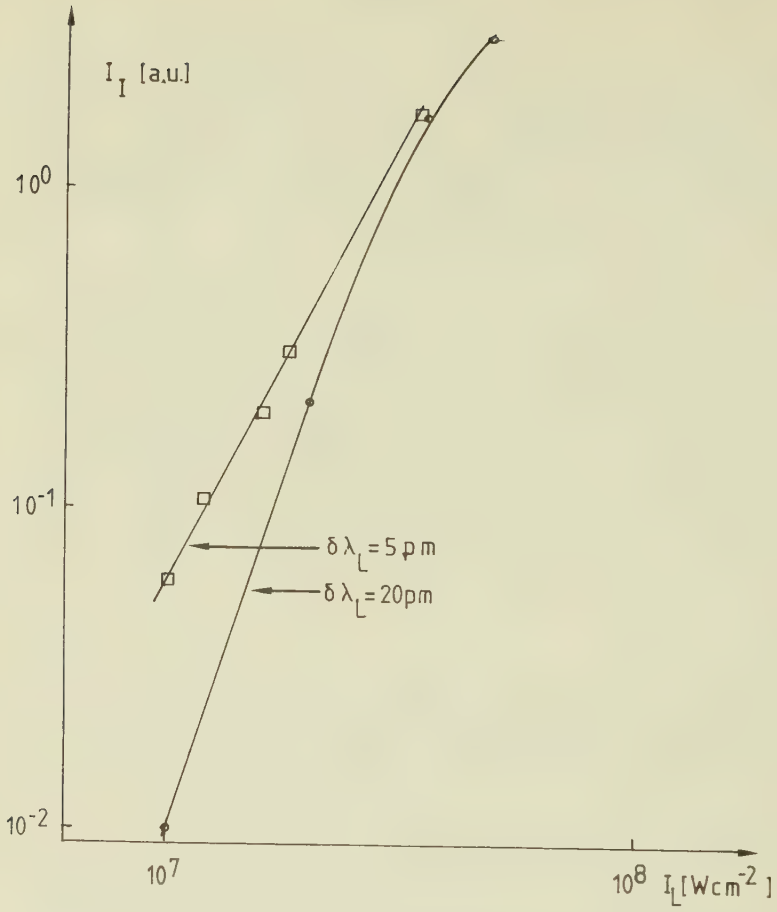

Fig. 26: Summenfrequenzmischung $\omega_F = 2\omega_L + \omega_I$ zweier Laserphotonen ω_L mit einem intern erzeugten Idlerphoton ω_I am Cadmium.

Gemessene Idlerintensität I_I in Abhängigkeit von der Primärintensität I_L bei verschiedenen Laserbandbreiten.
$N = 1 \times 10^{17}$ cm^{-3}.

Sättigungsverbreiterung des Zweiphotonenübergangs (vgl. 3.1.3.), die bei höheren Pumpintensitäten eine völlige Vernachlässigung der Laserbandbreite erlaubt. Mit einer solchen Sättigungsverbreiterung ist allerdings erst bei einer nennenswerten Entleerung des atomaren Grundzustandes, verbunden damit, daß die Ausgangsleistung von der Eingangsleistung unabhängig wird (vgl. Fig. 25, Bereich $I_L > 10^8$ W/cm^2), zu rechnen.

Abhängigkeit der Summenfrequenzkomponente von der Pumpintensität

Die Summenfrequenzkomponente wurde in Abhängigkeit von der Pumpintensität unter gleichen Bedingungen wie die Idlerkomponente gemessen. Die Meßwerte sind zusammen mit einer unter den o.a. Bedingungen berechneten Kurve in Fig. 27 dargestellt. Im Gegensatz zur Idlerkomponente erhält man eine gute Übereinstimmung nur im Bereich zwischen 1×10^7 und 4×10^7 W/cm^2. Eine Erklärung für die Abweichung bei höheren Pumpintensitäten konnte nicht gegeben werden. Der Verdacht, daß apparative Effekte (Sättigung des Photomultipliers) eine Rolle spielen, konnte durch einen Nachweis der Linearität der Anzeige (s. 3.2.3.) entkräftet werden.

An der Abhängigkeit der Summenfrequenzkomponente von der Pumpintensität kann die Notwendigkeit demonstriert werden, die Phasenanpassungseffekte dritter Ordnung in der Wellengleichung (44d) zu kompensieren. Eine erste Rechnung, die

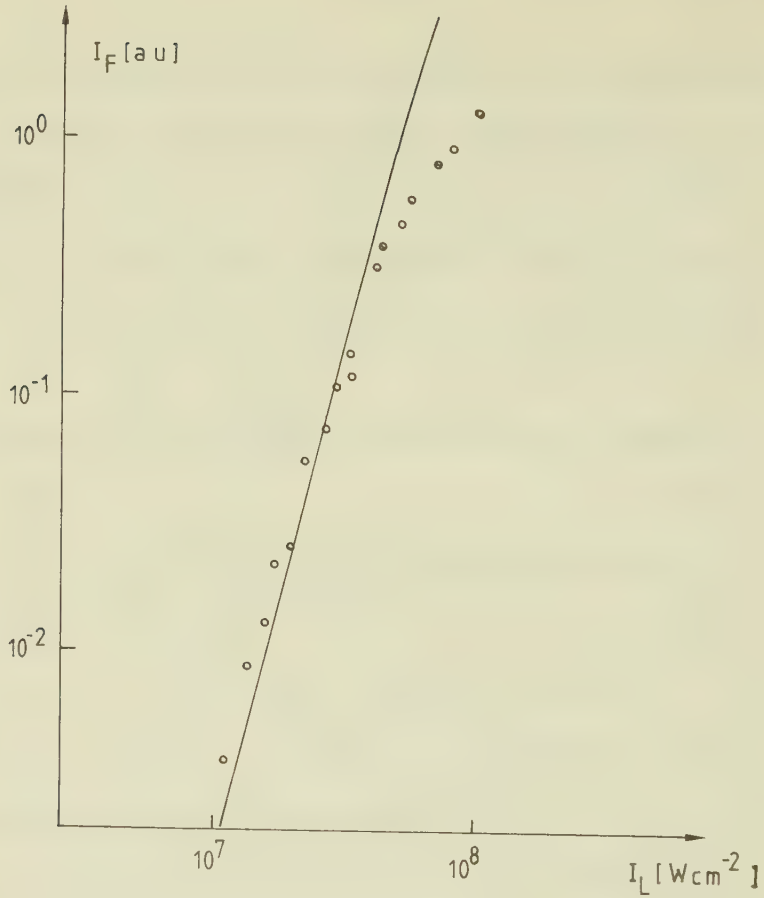

Fig. 27: Summenfrequenzmischung $\omega_F = 2\omega_L + \omega_I$ zweier Laserphotonen ω_L mit einem intern erzeugten Idlerphoton ω_I am Cadmium.

Abhängigkeit der Summenfrequenzintensität I_F von der Primärintensität I_L. Vergleich von Messung und Rechnung. $N = 1 \times 10^{17}$ cm^{-3}, $\Delta = 2{,}5 \times 10^{11}$ Hz (vgl. Anhang B).

unter Berücksichtigung von $Re\chi^{(3)}(\omega_F)$ sowie der Phase der Idlerkomponente, wie sie sich durch Lösung der Gleichung (44a) ergibt, durchgeführt wurde, zeigt Fig. 28. Hier treten ein Maximum bei etwa 8×10^7 W/cm^2 und ein Mimimum bei etwa $1{,}5 \times 10^8$ W/cm^2 auf, die im Experiment nicht beobachtet werden. Die Ursache für diese berechnete Oszillation ist darin zu sehen, daß die Phasenanpassungseffekte dritter Ordnung unvollständig behandelt werden, weil entsprechende Effekte bei der Laserwellenlänge (Gl. 44a) unberücksichtigt bleiben. Hieraus resultiert eine Verfälschung des Ergebnisses.

Abhängigkeit der Idler- und Summenfrequenzkomponente von der Resonanzabweichung des Lasers

Das Frequenzverhalten der erzeugten Komponenten hängt empfindlich von den an der Erzeugung beteiligten Elementarprozessen (vgl. 3.1.2./3.1.3.) ab. Daher stellt ein Vergleich von gemessenen mit berechneten Abhängigkeiten der erzeugten Intensitäten von der Resonanzabweichung des Lasers Δ (Anregungsfunktionen) einen kritischen Test der Beschreibung des Zusammenwirkens dieser Elementarprozesse in den Modellrechnungen dar. Die Anregungsfunktionen der Idler- und Summenfrequenzkomponente wurden synchron bei verschiedenen Primärintensitäten im Bereich $1 \times 10^7 - 1 \times 10^8$ W/cm^2 und bei verschiedenen Cadmiumteilchendichten im Bereich $1 \times 10^{16} - 1 \times 10^{17}$ cm^{-3} gemessen. Fig. 29 zeigt als Beispiel die gemessene und berechnete Abhängigkeit $I_I(\Delta)$ bei $I_L = 1 \times 10^8$W/cm^2

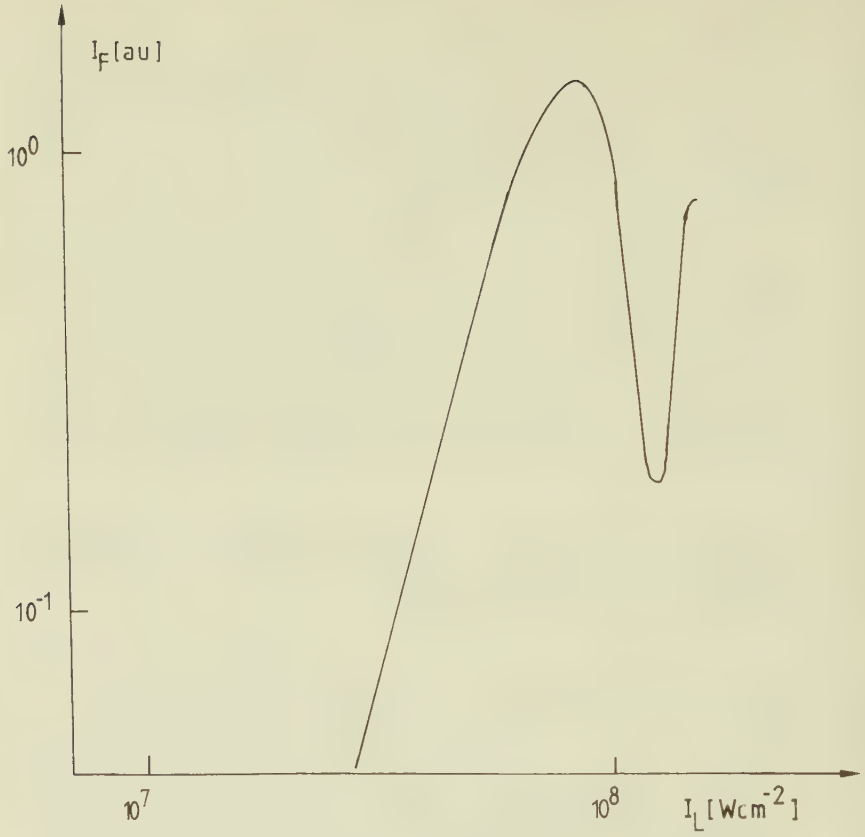

Fig. 28: Summenfrequenzmischung $\omega_F = 2\omega_L + \omega_I$ zweier Laserphotonen ω_L mit einem intern erzeugten Idlerphoton ω_I am Cadmium.

Berechnete Abhängigkeit der Summenfrequenzintensität I_F von der Primärintensität I_L unter Berücksichtigung von Phaseneffekten dritter Ordnung.

$N = 1 \cdot 10^{17}$ cm^{-3}, $\Delta = 2{,}5 \cdot 10^{11}$ Hz.

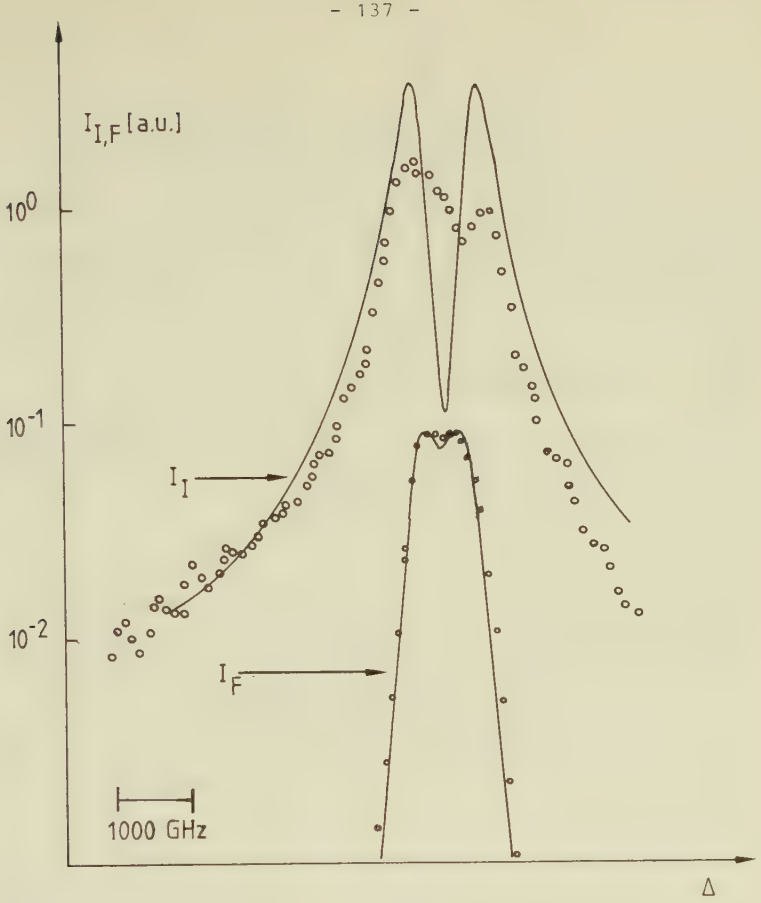

Fig. 29: Summenfrequenzmischung $\omega_F = 2\omega_L + \omega_I$ zweier Laserphotonen ω_L mit einem intern erzeugten Idlerphoton ω_I am Cadmium.

Abhängigkeit der Idler- und Summenfrequenzintensität von der Resonanzabweichung $\Delta = \Omega_{31} - 2\omega_L$ des Lasers. Vergleich von Messung und Rechnung.

$N = 1 \times 10^{17}$ cm^{-3}, $I_L = 1 \times 10^8$ W/cm^2.

und $N = 1 \times 10^{17}$ cm^{-3}. Die Profile sind breit (verglichen mit der Laserbandbreite von $2,6 \times 10^{11}$ Hz und den atomaren Linienbreiten von $2,0 \times 10^{10}$ Hz) und weisen eine deutliche Einsattelung im zentralen Bereich auf, die in der berechneten Kurve wesentlich tiefer ist als in der gemessenen. Die Asymmetrie der gemessenen Kurve im Linienkern wie im Linienflügel wird in der Rechnung nicht wiedergegeben, da der theoretische Ansatz symmetrisch ist. Auch die Oszillationen im weiten Flügel der gemessenen Kurve werden in der Rechnung nicht reproduziert.

Die Verbreiterung der Profile kann als Intensitätsverbreiterung verstanden werden, wie der Vergleich mit der bei $I_L = 1 \times 10^7$ W/cm^2 gemessenen und berechneten Kurve (Fig. 30) zeigt. Dieser Effekt ist sowohl von der OPSE (vgl. 3.1.2.) als auch von der parametrischen Erzeugung (vgl. 3.1.3.) zu erwarten.

Dagegen kann das Auftreten einer Einsattelung im Rahmen der analytischen Abschätzungen nur auf das Verhalten der parametrischen Erzeugung zurückgeführt werden. Auch von Reif /62/ ist bei den Messungen der Idlerkomponente am Strontium eine solche Einsattelung beobachtet, aber nicht explizit erklärt worden. Von der Theorie (Gl.96 und Fig.14) her fällt die exakte Position der Zweiphotonenresonanz mit dem Minimum der Einsattelung zusammen. Eine genaue experimentelle Bestimmung der Position der Zweiphotonenresonanz beim Cadmium wurde nicht

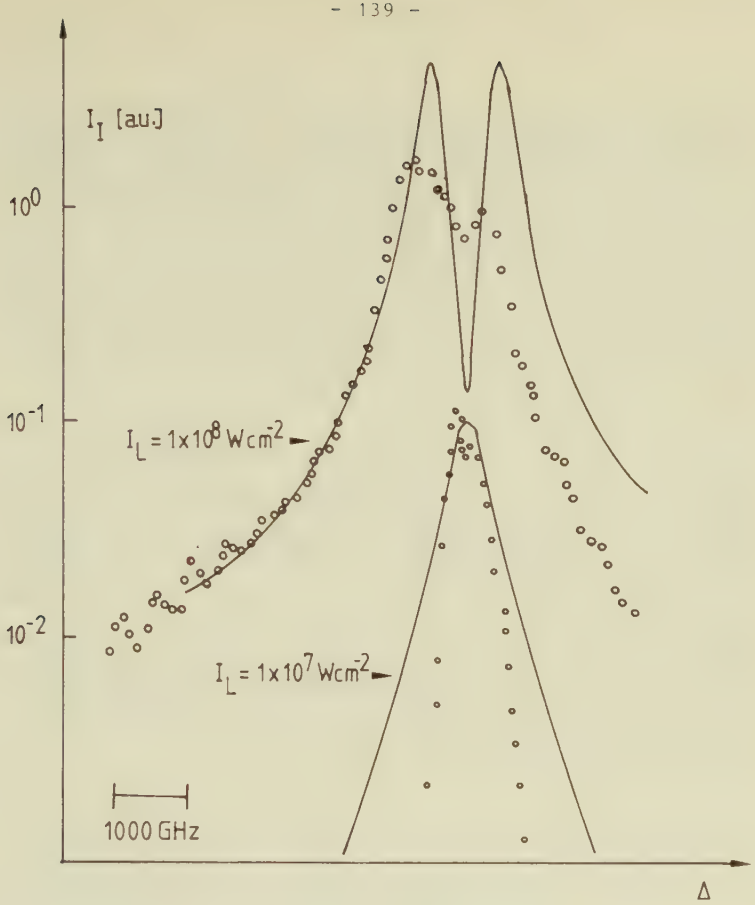

Fig. 30: Summenfrequenzmischung $\omega_F = 2\omega_L + \omega_I$ zweier Laserphotonen ω_L mit einem intern erzeugten Idlerphoton ω_I am Cadmium.

Abhängigkeit der Idlerintensität I_I von der Resonanzabweichung $\Delta = \Omega_{31} - \omega_L$ des Lasers bei verschiedenen Primärintensitäten. Vergleich von Messung und Rechnung.

$N = 1 \times 10^{17}\ cm^{-3}$.

durchgeführt. Aufgrund der Asymmetrie im Linienkern der gemessenen Kurve besteht daher eine gewisse Unsicherheit bezüglich der Lage der Zweiphotonenresonanz innerhalb des gemessenen Profils. Der Fit des Nullpunktes der Frequenzskala in Fig. 29 erfolgte willkürlich anhand der synchron mit $I_I(\Delta)$ gemessenen Anregungsfunktion $I_F(\Delta)$ der Summenfrequenzkomponente unter Berücksichtigung der Modellrechnungen.

Die genauen Ursachen für das Auftreten der Asymmetrie im Linienkern wie auch im Linienflügel der gemessenen Kurve $I_I(\Delta)$ sind unklar. Mögliche Effekte, die hierzu beitragen können, sind eine Asymmetrie des Laserprofils (vgl. Fig. 17), Phasenanpassungseffekte oder eine Asymmetrie in der Stoßverbreiterung der atomaren Resonanzen durch das Buffergas Helium /68/. In diesem Zusammenhang sei auch auf die analoge Messung am Barium (Fig. 11) verwiesen.

Die beobachteten Oszillationen in den Linienflügeln sind möglicherweise Auswirkungen der Phasenanpassungsbedingung auf den parametrischen Anteil an der Idlererzeugung: Bei einer frequenzvariablen Signalkomponente ist eine Variation der Laserfrequenz in der Gegend der Zweiphotonenresonanz mit einer Variation der Signalkomponente in der Gegend der Einphotonenresonanz verknüpft, die mit starken Brechungsindexänderungen verbunden ist.

Demgegenüber wird in der Anregungsfunktion $I_F(\Delta)$ für die Summenfrequenzkomponente (Fig. 31) nur eine leichte Einsattelung sowie ein deutlich schmaleres Linienprofil gemessen. Der relative Verlauf der Kurve wird von der Rechnung gut reproduziert, wenn man von einer auch hier auftretenden leichten Asymmetrie in den Linienflügeln absieht.

Im Sättigungsbereich ist bei der Summenfrequenzerzeugung aufgrund formaler Übereinstimmungen genau wie bei der parametrischen Erzeugung (s. /13/) mit einer Einsattelung im Zentrum der Zweiphotonenresonanz zu rechnen. Sie tritt auch ohne die Einwirkung der entsprechenden Einsattelung bei der am Kopplungsprozess beteiligten Idlerkomponente auf. Daß beide Einsattelungen unabhängig voneinander auftreten, wird durch den gemessenen Abstand ihrer spektralen Positionen von ca.250 GHz deutlich. Diese Verschiebung geht aus Fig. 29 hervor, wo das Minimum der gemessenen Kurve $I_F(\Delta)$ im angehobenen Flügel der gemessenen asymmetrischen Kurve $I_I(\Delta)$ liegt. Die Verschiebung kann nicht auf apparative Effekte zurückzuführen sein, da die Kurven synchron gemessen wurden. Es ist vielmehr anzunehmen, daß sie auf den gleichen Mechanismen beruht, die die Asymmetrieen hervorrufen.

Zwei Effekte, die man unvoreingenommen zur Erklärung der Verschiebung heranziehen würde, können in jedem Fall ausgeschlossen werden:

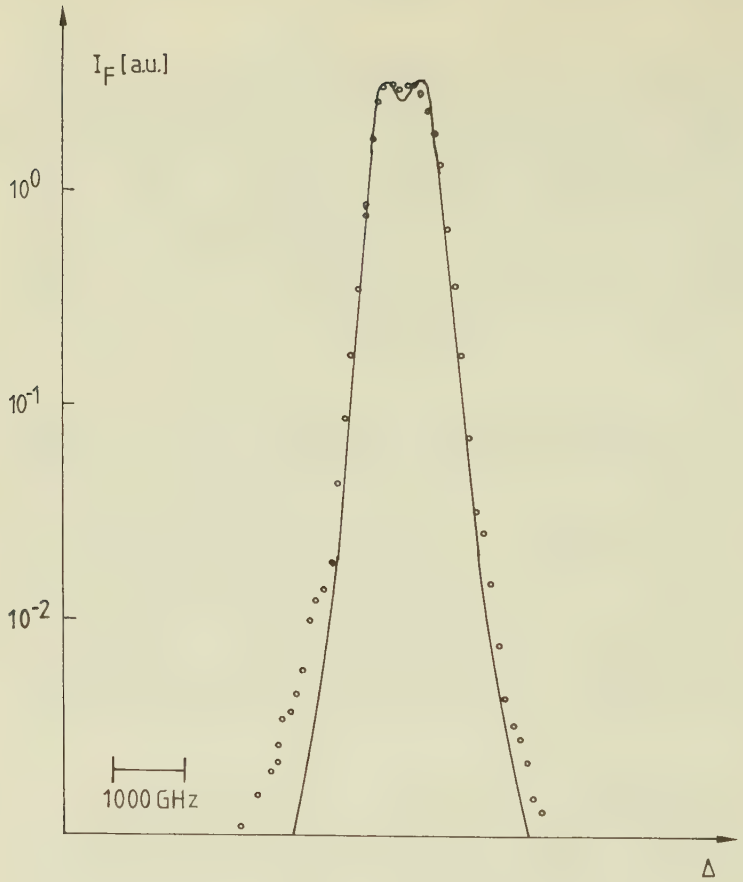

Fig. 31: Summenfrequenzmischung $\omega_F = 2\omega_L + \omega_I$ zweier Laserphtonen ω_L mit einem intern erzeugten Idlerphoton ω_I am Cadmium.

Abhängigkeit der Summenfrequenzintensität I_F von der Resonanzabweichung $\Delta = \Omega_{31} - 2\omega_L$ des Lasers. Vergleich von Messung und Rechnung.

$N = 1 \times 10^{17}$ cm^{-3}, $I_L = 1 \times 10^8$ W/cm^2.

- Der dynamische Stark-Effekt kann in diesem Zusammenhang keine Rolle spielen, da die hierdurch hervorgerufene Verschiebung bzw. Aufspaltung der Niveaus mit etwa 2×10^9 Hz um mehr als eine Größenordnung unterhalb des gemessenen Effektes liegt (vgl. 3.1.1., Gl. 66/67).
- Das Linienzentrum der gemessenen Kurve $I_I(\Delta)$ erinnert an eine Dispersionsfunktion, die die Phasenanpassung beim parametrischen Anteil an der Idlererzeugung wiederspiegeln würde. Konsistent hiermit wäre eine Festlegung der Position der Zweiphotonenresonanz in der Nähe des Wendepunktes (vgl. Fig. 29). Diese Deutung ist allerdings nicht haltbar, da die Phasenanpassung $\Delta k = 0$ auf der langwelligen Seite der Zweiphotonenresonanz zu erwarten ist, das intensivere Maximum aber auf der kurzwelligen Seite gemessen wurde.

Bemerkenswert ist, daß Verbreiterung und Kontrast der Einsattelung in der Kurve $I_I(\Delta)$ auch von der Cadmiumteilchendichte abhängig sind. Fig. 32 zeigt gemessene und berechnete Kurven bei $N = 1 \times 10^{16}$ und 1×10^{17} cm^{-3} ($I_L = 1 \times 10^8$ W/cm^2). Der in der Messung nachgewiesene Trend wird in der Rechnung richtig wiedergegeben.

Dieser Effekt kann nicht durch OPSE und parametrische Erzeugung einzeln (vgl. 3.1.2./3.1.3.) verstanden werden. Die Verbreiterung der Kurve $I_I(\Delta)$ mit der Teilchendichte impliziert eine stärkere Teilchendichteabhängigkeit der Idlerkomponente im Linienflügel als im Linienkern. Im Prinzip ist

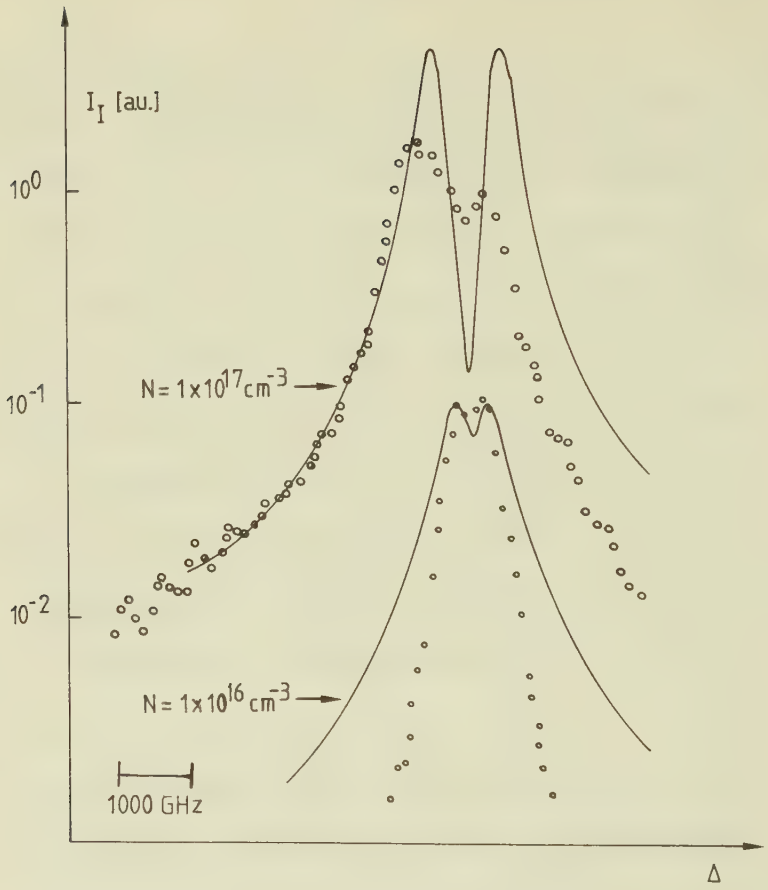

Fig. 32: Summenfrequenzmischung $\omega_F = 2\omega_L + \omega_I$ zweier Laserphotonen ω_L mit einem intern erzeugten Idlerphoton ω_I am Cadmium.

Abhängigkeit der Idlerintensität I_I von der Resonanzabweichung $\Delta = \Omega_{31} - 2\omega_L$ des Lasers bei verschiedenen Cadmiumteilchendichten.

$I_L = 1 \times 10^8$ W/cm^2.

dieses Verhalten von der OPSE zu erwarten, da im Linienflügel, also bei kleineren Pumpraten ein exponentieller Zusammenhang (vgl. Gl. 87) und im Linienkern, bei hohen Pumpraten, ein linearer Zusammenhang (vgl. Gl. 90) mit der Teilchendichte zu erwarten ist. Führt man die Einsattelung in der Linienmitte auf das Verhalten der parametrischen Erzeugung zurück, so sollte der Kontrast allerdings allein vom Sättigungsparameter S (vgl. Gl. 97) und damit nicht von der Teilchendichte abhängig sein. Das Verschwinden der Einsattelung bei reduzierter Teilchendichte kann daher nur im Zusammenspiel von OPSE und parametrischer Erzeugung, wie es in den numerischen Rechnungen berücksichtigt wird, verstanden werden.

3.3.3. Absolutleistungen und zeitliches Verhalten der erzeugten Komponenten

Absolutleistungen

Bei der Idlerkomponente (1040 nm) und der Summenfrequenzkomponente (159 nm) wurden Messungen der absoluten Pulsenergie durchgeführt, die unter Annahme eines vom Laserpuls geprägten zeitlichen Verhaltens der erzeugten Pulse eine Bestimmung der Absolutleistungen gestatten.

Die erzeugte Idlerleistung wurde auf diese Weise experimentell zu ca. 100 W bestimmt. Die bei $I_L = 1 \times 10^8$ W/cm^2 berechnete Idlerleistung liegt bei 1,2 kW und damit etwa eine

Größenordnung höher. Hierbei wurde eine Resonanzabweichung von $2{,}5 \times 10^{11}$ Hz zugrundegelegt (vgl. Anhang B) und angenommen, daß die Idlerkomponente die gleiche räumliche Verteilung wie die Primärstrahlung besitzt.

Messungen bei der Summenfrequenzkomponente ergaben ein Signallevel von ca. 10 mW. Die unter o.a. Bedingungen berechnete Leistung liegt mit etwa 100 W um vier Größenordnungen höher; bei den Berechnungen wurde allerdings angenommen, daß die Phasenanpassung $\Delta k = 0$ bei einer Cadmiumteilchendichte von 1×10^{17} cm^{-3} gegeben war.

Der erste Verdacht, die Diskrepanzen seien auf fehlerhafte Messungen zurückzuführen, konnte nicht bestätigt werden. Bei der Idlerkomponente, wo das Meßsystem lediglich aus einem Farbglasfilter /G37/, einem pyroelektrischen Detektor /G39/ und einem Oszillographen /G40/ bestand (vgl. 3.2.3.), deren Funktion im einzelnen überprüft wurde, sind systematische Fehler nahezu ausgeschlossen, und der Meßwert sollte bis auf einen Faktor 2 genau sein.

Bei der Summenfrequenzkomponente kommen im wesentlichen drei Fehlerquellen in Betracht:

- Unsicherheit in der Transmission des Interferenzfilters /G43/
- Unsicherheit in der Empfindlichkeit des Photomultipliers /G41/
- mögliche Sättigung des Photomultipliers.

Die Transmission des Interferenzfilters ist lt. Herstellerangaben bis auf einen Faktor 3 bekannt. Der Multiplier /G41/ ist vom Hersteller mit einer Eichkurve geliefert worden. Die zeitliche Drift der Empfindlichkeit kann aufgrund von Messungen über den Zeitraum von einem Jahr mit weniger als einem Faktor 2 angenommen werden. Defekte am Multiplier /G41/ können dadurch nahezu ausgeschlossen werden, daß die Ergebnisse mit einem Multiplier /G42/ ähnlicher Spezifikation von einem anderen Hersteller bis auf einen Faktor 2,5 reduziert werden konnten. Zur Frage der Sättigung des Photomultipliers /G41/ wurde ein Experiment durchgeführt (vgl. 3.2.3., Fig. 18), in dem die Linearität der Anzeige im gesamten Meßbereich nachgewiesen wurde.

Es kann angenommen werden, daß Vernachlässigungen bzw. unrealistische Eingangszahlenwerte in den Modellrechnungen für die Diskrepanzen verantwortlich sind. Eine schwer abschätzbare Rolle spielt die Beschränkung auf ein Vierniveausystem. Die Gültigkeit dieser Näherung ist weitgehend ungeklärt. In diesem Zusammenhang sei nochmals auf den entsprechenden Abschnitt von 3.1.1. verwiesen.

Ein gravierender Punkt ist auch die Unsicherheit bei der Bestimmung der Cadmiumteilchendichte in der Zelle. Bei einer angenommenen Säulentiefe von 2×10^{17} cm^{-2}, entsprechend dem Maximum der berechneten Phasenanpassungskurve (Fig. 23), liegt die berechnete Summenfrequenzleistung mit ca. 600 mW

nur knapp zwei Größenordnungen über dem gemessenen Wert.

Schließlich ist noch die Frage offen, inwiefern die Annahme der Stationarität in den Modellrechnungen zur Diskrepanz bezüglich der Absolutleistungen beiträgt, d.h. es kann nicht ausgeschlossen werden, daß instationäre Effekte in der gegebenen experimentellen Situation eine Rolle spielen und zu einer Reduktion der Absolutleistungen führen, die in den Rechnungen unberücksichtigt bleibt. Die Abschätzungen zur stationären Näherung (vgl. 3.1.1.) haben ergeben, daß die Bedingungen für die Gültigkeit dieser Näherung zwar nur schlecht erfüllt sind, daß aber hieraus resultierende Fehler, speziell bei der Summenfrequenzmischung zu einer Verringerung der berechneten Absolutleistung führen sollten. Allein aufgrund der bestehenden Unsicherheit in diesem Punkt erschien es angebracht, experimentelle Untersuchungen zum zeitlichen Verhalten der erzeugten Strahlung durchzuführen. Die Untersuchungen mußten auf die Idlerkomponente beschränkt bleiben, da die Zeitauflösung der verfügbaren Detektoren für den VUV-Bereich mit etwa 15 ns bei einer Laserpulsdauer von 6 ns den hierbei auftretenden Anforderungen nicht genügte.

Das zeitliche Verhalten der Idlerkomponente

Das zeitliche Verhalten der Idlerkomponente im Vergleich zum Laserpuls wurde gemessen. Hierzu wurden zwei schnelle Photodioden /G24/ verwendet, wobei die erste vor der Cadmium-

zelle zur Messung des Laserpulses und die zweite hinter der Cadmiumzelle zur Messung der Idlerkomponente diente. Die Laufzeitdifferenz der Signale wurde in einem Vorversuch bestimmt, bei dem ohne Verwendung des Farbglasfilters /G37/ auf beiden Detektoren der Laserpuls registriert wurde. Dies ermöglichte bei den Messungen eine genaue zeitliche Zuordnung zwischen Laser und Idlerkomponente.

Eine typische Messung ist in Fig. 33a dargestellt. Auffällig ist die Einsattelung in der Idlerkomponente, die zeitlich in die ansteigende Flanke des Laserpulses fällt. Die ansteigende Flanke der Idlerkomponente verläuft deutlich steiler, die abfallende Flanke vergleichbar mit der Form des Laserpulses. Hierdurch ist offensichtlich, daß instationäre Effekte eine Rolle spielen, die in den Rechnungen nach dem in 1.5. dargestellten Formalismus unberücksichtigt bleiben.

Zum Verständnis des zeitlichen Verhaltens der Idlerkomponente wurden von Guzmán und Meystre /28/ zeitabhängige numerische Rechnungen auf der Grundlage der semiklassischen Theorie durchgeführt. Das Ergebnis ist in Fig. 33b dargestellt. Der steile Anstieg, die Einsattelung und der flache Abfall im gemessenen zeitlichen Verhalten werden von der Rechnung richtig wiedergegeben. Lediglich bezüglich der zeitlichen Position der Einsattelung relativ zum Maximum des Laserpulses bestehen Diskrepanzen zwischen Rechnung und Experiment. Die Rechnungen lassen das Auftreten der Einsattelung als Rabi-

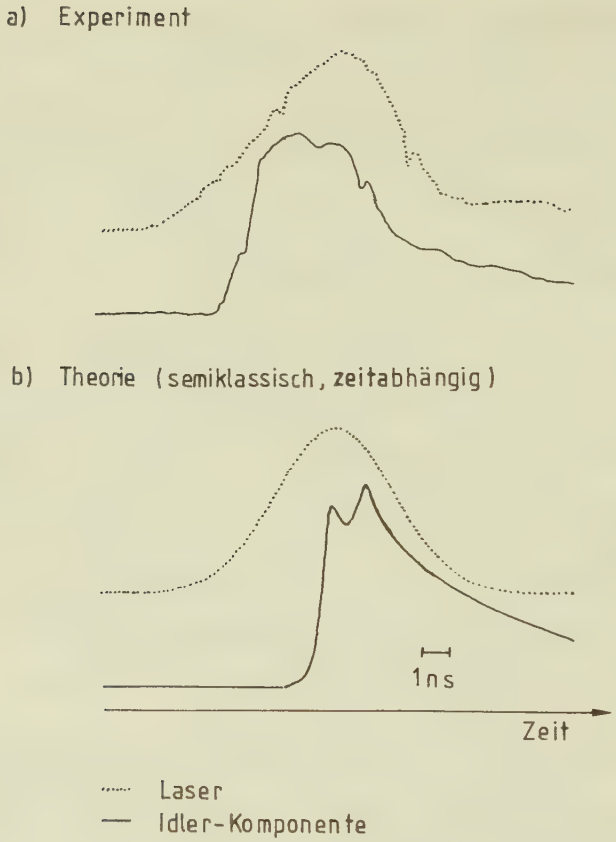

Fig. 33: Summenfrequenzmischung $\omega_F = 2\omega_L + \omega_I$ zweier Laserphotonen ω_L mit einem intern erzeugten Idlerphoton ω_I am Cadmium.

Zeitliches Verhalten der Idlerkomponente im Vergleich zur Primärstrahlung.

a) Messung ($I_L = 1 \times 10^8$ W/cm^2, Nz = 2×10^{17} cm^{-2}, $\delta\lambda_L = 2{,}6 \times 10^{11}$ Hz)

b) Semiklassische Rechnung ($I_L = 1 \times 10^8$ W/cm^2, Nz = 2×10^{15} cm^{-2}, $\delta\lambda_L = 1{,}3 \times 10^9$ Hz).

Oszillationen deuten; der gemessene zeitliche Abstand der beiden Maxima ist zwar mit etwa 2 ns um einen Faktor 4 größer als die reziproke Zweiphotonen-Rabi-Frequenz (vgl. 3.1.1.), bei einer Zeitauflösung von ca. 1,5 ns in der Messung stellt dies jedoch keinen Widerspruch dar.

Absolutleistungen aus der Sicht der zeitabhängigen semiklassichen Rechnungen

Unter der Voraussetzung, daß die stationäre Näherung wesentliche Ursache für die Diskrepanz bezüglich der Absolutleistungen ist, wäre von der zeitabhängigen numerischen Rechnung auf der Grundlage der semiklassischen Theorie eine bessere Übereinstimmung mit dem Experiment zu erwarten. Die Rechnungen tragen aber nur wenig zur Erklärung der Diskrepanz bei, da sie unter Verwendung unrealistischer Parameter durchgeführt wurden. Die zeitabhängigen Rechnungen wurden bei einer Säulentiefe von 2×10^{15} cm^{-2}, also zwei Größenordnungen unter der Säulentiefe bei der entsprechenden zeitaufgelösten Messung und nahezu drei Größenordnungen unter der Säulentiefe bei den Absolutleistungsmessungen durchgeführt. Zudem wurden die dispersiven Einflüsse des Buffergases nicht berücksichtigt. Die Wahl der Parameter bei diesen Rechnungen ergibt sich aus der Notwendigkeit, bei der numerischen Behandlung die Rechenzeit zu begrenzen. Bei einer realistischen Säulentiefe treten aufgrund der Phaseneffekte erster Ordnung in den berechneten Feldstärken orts-

abhängige Oszillationen auf, die für eine Konvergenz der numerischen Integration extrem kleine Schrittweiten erfordern (vgl. 1.1., 1.5.1., 1.5.6.).

Die berechnete Absolutleistung für die Summenfrequenz liegt zwar etwa drei Größenordnungen unterhalb des bei einer Säulentiefe von 8×10^{17} cm^{-2} gemessenen Wertes, eine Extrapolation aufgrund gemessener oder stationär berechneter Relativabhängigkeiten über mehrere Größenordnungen in der Säulentiefe erscheint aber äußerst fragwürdig. Über eine halbe Größenordnung in der Säulentiefe wurde eine ungefähr quadratische Abhängigkeit der Summenfrequenzkomponente gemessen (vgl. Fig. 21), in Übereinstimmung mit der über eine Größenordnung in der Säulentiefe durchgeführten stationären Rechnung (vgl. Fig. 23). Selbst unter der Annahme, daß diese Skalierung über drei Größenordnungen gültig ist, liegen die aus der zeitabhängigen Rechnung extrapolierten Werte für die Absolutleistung der Summenfrequenz etwa drei Größenordnungen oberhalb des experimentellen Wertes und damit in der Gegend des Ergebnisses der stationären Rechnung.

4. Schlußbemerkungen

Ein Vergleich der gemessenen mit stationär berechneten relativen Abhängigkeiten der beim Cadmium erzeugten Idler- und Summenfrequenzkomponente von Teilchendichte, Laserintensität und -resonanzabweichung gestattet es , die physikalischen Effekte der atomaren Sättigung bei zweiphotonenresonanten Vierwellenkopplungsprozessen zu verstehen. Gemessene Asymmetrieen in einzelnen Linienprofilen können durch die Rechnungen allerdings nicht erklärt werden. Die Diskrepanzen zwischen berechneten und gemessenen Absolutleistungen sind wahrscheinlich auf Unsicherheiten bei der Bestimmung der Cadmiumteilchendichte, auf die Beschränkung auf ein Vierniveausystem in den Rechnungen sowie auf instationäre Effekte im nichtlinearen Medium zurückzuführen. Zeitabhängige semiklassische Rechnungen tragen aufgrund numerischer Probleme, die bei realistischen Parametern auftreten, nur wenig zur Erklärung der Diskrepanzen bei.

Um im Rahmen des Vergleiches offen gebliebene Fragen zu beantworten, wären

- Messungen mit einem im spektralen Profil symmetrischen, möglichst Fourier-begrenzten Laser
- Bestimmung asymmetrischer Anteile an der atomaren Linienverbreiterung
- eine detaillierte numerische Berücksichtigung der Phasenfehlanpassung

- eine exakte Bestimmung der Teilchendichte sowie des Photoionisationsquerschnittes und nicht zuletzt
- eine Verlängerung der Laserpulsdauer zur Gewährleistung der Gültigkeit der stationären Näherung

nötig.

Zusammenfassung

Ziel der Arbeit war die Erzeugung kohärenter UV- und VUV-Strahlung durch zweiphotonenresonante Vierwellenkopplungsprozesse in Metalldämpfen und die Untersuchung hierbei auftretender Sättigungseffekte.

In Vorversuchen mit Bariumdampf wurde zunächst qualitativ die Effizienz verschiedener Mischprozesse (Frequenzverdreifachung, parametrische Erzeugung, Summen- und Differenzfrequenzmischung, Raman- und Hyperramanstreuung) bei Abstimmung eines gepulsten Farbstofflasers auf die Barium-Zweiphotonenresonanzen $6s^2\ ^1S_0 \rightarrow 5d7s\ ^1D_2$ (λ_L =591,6 nm), $6s8s\ ^1S_0$ (λ_L = 581,7 nm) und $6p^2\ ^3P_0$ (λ_L = 579,6 nm) untersucht. Die höchste Konversion konnte bei der Kopplung $\omega_F = 2\omega_L - \omega_I$ (λ_F = 353,5 nm) zweier Laserphotonen ω_L mit einem intern erzeugten Idlerphoton ω_I (λ_I = 1812 nm, resonant zum Übergang $5d6p\ ^1P_1 \rightarrow 5d^2\ ^1D_1$) erzielt werden. Hier wurde bei 1MW Primärleistung und 10^{16} cm^{-3} Bariumteilchen ungefähr 1 kW UV-Strahlung erzeugt. Die hohe Effizienz dieses Prozesses erklärt sich durch die energetische Nähe von ω_F zu einer Einphotonenresonanz, durch die die nichtlineare Suszeptibilität eine zusätzliche Überhöhung erfährt. Sättigungseffekte wurden bei Primärintensitäten oberhalb 10^8 W/cm^2 beobachtet.

Zur VUV-Erzeugung ist der Kopplungsprozess $\omega_F = 2\omega_L + \omega_I$ eine effiziente Alternative zur Frequenzverdreifachung.

Da hierfür höhere Termenergieen als beim Barium benötigt werden, wurde als nichtlineares Medium Cadmium gewählt. Bei Abstimmung eines UV-Lasers auf die Zweiphotonenresonanz $5s^2\ ^1S_0 \rightarrow 5s6s\ ^1S_0$ (λ_L = 375 nm) liegt die Idlerkomponente resonant zum Übergang $5s6s\ ^1S_0 \rightarrow 5s5p\ ^1P_1$ (λ_I =1040 nm) und die Summenfrequenzkomponente im weiten Flügel des Übergangs $5s6p\ ^1P_1 \rightarrow 5s^2\ ^1S_0$ (λ_F = 159 nm). Ein weiterer Vorteil des Systems besteht darin, daß näherungsweise nur diese vier Terme beim Kopplungsprozess berücksichtigt werden müssen. Dadurch ist ein quantitativer Vergleich der experimentellen Ergebnisse mit numerischen Modellrechnungen möglich.

Als Primärlichtquelle diente ein Excimerlaser-gepumptes UV-Farbstofflasersystem (Hänsch-Oszillator/ Nachverstärker, $P_L \leq 500$ kW, T_L = 6 ns), das Vorteile gegenüber Nd:Yag-gepumpten Systemen mit diversen Verdopplerstufen aufweist. Die für die Effizienz der Frequenzumsetzung notwendige Phasenanpassung wurde durch homogene Beimischung von Helium zum Cadmiumdampf realisiert. Hierzu mußte eine homogen bis 500°C heizbare Edelstahlzelle mit MgF_2-Fenster entwickelt werden, da der Betrieb eines Heatpipe-Ofens wegen der ungünstigen Kapillareigenschaften des Cadmiums nicht realisierbar war. Zur Steuerung des gesamten Experimentes und zur Meßwerterfassung diente ein Microcomputersystem.

Die Idler- und Summenfrequenzintensität wurde in Abhängigkeit von den Versuchsparametern Cadmiumteilchendichte (10^{16} -

10^{17} cm^{-3}) sowie Intensität (10^{7} - 10^{8} W/cm^{2}) und Resonanzabweichung (0 - 5000 GHz) des Lasers zeitintegriert gemessen, wobei Sättigungseffekte beobachtet wurden. Es zeigte sich, daß im Bereich der Versuchsparameter Schwächung der Primärstrahlung als Sättigungseffekt vernachlässigbar ist. Die Idlerkomponente erwies sich im Experiment als festfrequent, unabhängig von der Laserwellenlänge. Sie lässt sich daher als Überlagerung von optisch gepumpter stimulierter Emission (OPSE) und parametrischer Vierwellenkopplung (PG) darstellen.

Zur quantitativen Beschreibung der experimentellen Resultate wurde als theoretisches Modell die stationäre Störungsrechnung gewählt. Als dominiernder Mechanimus der Sättigung wurde die Umverteilung der Besetzungen im nichtlinearen Medium angesetzt, die in Ratengleichungsnäherung beschrieben wird.

Berechnete relative Abhängigkeiten der erzeugten Intensitäten von den Versuchsparametern geben die Meßresultate in etwa richtig wieder; die meisten Abweichungen können anhand von Phasenanpassungseffekten erklärt werden, die in die Rechnung nicht vollständig eingehen konnten. Die Übereinstimmung zeigt, daß die beobachteten Sättigungseffekteim Zusammenwirken der Elementarprozesse OPSE, PG und Summenfrequenzmischung durch Abbau der Besetzungsdifferenzen erklärt werden können. Analytische Abschätzungen dieser Prozesse machen die Ergebnisse der numerischen Rechnung verständlich.

Allerdings treten bei den Absolutleistungen Diskrepanzen auf, bei der Idlerkomponente von etwa einer Größenordnung (P_{theor} ~ 1 kW, $P_{exp} \cong 100$ W) und bei der Summenfrequenzkomponente von etwa vier Größenordnungen ($P_{theor} \cong 100$ W, $P_{exp} \cong 10$ mW); diese werden anhand der Meßunsicherheit in der Teilchendichte sowie der Näherungen im Modell diskutiert. Hierbei werden Abschätzungen und vernachlässigte Effekte (z.B. Ionisation, dynamischer Stark-Effekt) herangezogen. Zur Frage der Gültigkeit der stationären Näherung wurden zusätzlich zeitaufgelöste Messungen durchgeführt. Es wurden instationäre Effekte beobachtet, die allerdings nicht zur Erklärung der Diskrepanzen beitragen. Sie ließen sich auch nicht durch einen Vergleich mit ersten Ergebnissen zeitabhängiger semiklassischer Rechnungen begründen.

Literaturverzeichnis

/ 1/ P. Franken et al. — Phys. Rev. Lett. 7, 118 (1961)

/ 2/ G.H.C. New, J.F. Ward — Phys. Rev. Lett. 19, 556 (1967)

/ 3/ S.E. Harris, R.B. Miles — Appl. Phys. Lett. 19, 385 (1971)

/ 4/ R.B. Miles, S.E. Harris — IEEE QE 9, 470 (1973)

/ 5/ R.T. Hodgson et al. — Phys. Rev. Lett. 32, 343 (1974)

/ 6/ J.J. Wynne, R. Beigang — Phys. Rev. A23, 2736 (1981)

/ 7/ J. Reif, H. Walther — Appl. Phys. 15, 361 (1978)

/ 8/ R. Mahon et al. — Opt. Lett. 4, 360 (1979)

/ 9/ H. Langer — Dissertation IPP, München (1981)

/10/ H. Puell, C.R. Vidal — Phys. Rev. A14, 2225 (1976)

/11/ D. Grishkowski — Phys. Rev. A12, 2514 (1975)

/12/ W.H. Louisell
P. Meystre
Phys. Rev.
A23, 1015 (1981)

/13/ J.F. Ward
A.V. Smith
Phys. Rev. Lett.
35, 653 (1975)

/14/ D. Cotter
IEEE
QE 14, 148 (1978)

/15/ R.H. Lehmberg et al.
Appl. Phys. Lett.
25, 374 (1974)

/16/ D. Grishkowski
J.H. Armstrong
Phys. Rev.
A6, 1566 (1972)

/17/ J.N. Elgin
J. Phys.
B13, 665 (1980)

/18/ H. Scheingraber
C.R. Vidal
Opt. Comm.
38, 75 (1981)

/19/ H. Puell et al.
Phys. Rev.
A22, 1165 (1980)

/20/ E.A. Stappaerts
IEEE
QE 15, 110 (1979)

/21/ W. Hartig
Appl. Phys.
15, 427 (1978)

/22/ H.E. Schöne
Dissertation
Universität Bielefeld (1979)

/23/ J. Heinrich
W. Behmenburg
Appl. Phys.
23, 333 (1980)

/24/ J. Heinrich
W. Behmenburg
Verh. DPG VI
15, 818 (1980)

/25/ J. Heinrich et al.
Verh. DPG VI
16, 405 (1981)

/26/ J. Bokor et al.
Opt. Lett.
6, 182 (1981)

/27/ F. Tomkins
R. Mahon
Opt. Lett.
4, 179 (1981)

/28/ A. Guzmán
P. Meystre
Verh. DPG VI
17, 461 (1982)

/29/ G. Grynberg
J. Phys.
B14, 2009 (1981)

/30/ N. Bloembergen
Nonlinear Optics
Benjamin, New York (1965)

/31/ J.E. Ward
G.H.C. New
Phys. Rev.
185, 57 (1969)

/32/ G.C. Bjorklund
IEEE
QE 11, 287 (1975)

/33/ D.C. Hanna et al.
(Hrsg.)
Nonlinear Optics of Free
Atoms and Molecules, S. 16
Springer, Berlin (1979)

/34/ P.N. Butcher
Nonlinear Optical Phenomena
Bull. 200 EES
Ohio State Univ., Columbus (1965)

/35/ B.J. Orr
J.F. Ward
Molec. Phys.
20, 513 (1971)

/36/ M.A. Yuratich
D.C. Hanna
J. Phys.
B9, 729 (1976)

/37/ J. Ducuing
Proc. Int. School of Phys.
Enrico Fermi, Course XLII
Hrsg.: R.J. Glauber
Academic Press, New York (1969)

/38/ D. Cotter
Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules
Hrsg.: D.C. Hanna et al.
Springer, Berlin (1979)

/39/ C.C. Wang
L.I. Davis
Phys. Rev. Lett.
35, 650 (1975)

/40/ A.T. Georges et al.
Opt. Comm.
18, 509 (1976)

/41/ D. Normand et al.
Phys. Lett.
65a, 290 (1978)

/42/ J.H. Glowina
Phys. Rev. Lett.
49, 21 (1982)

/43/ T.Mossberg et al.
Opt. Comm.
25, 121 (1978)

/44/ V.G. Arkhipkin
Sov. J. Q. El.
11, 656 (1981)

/45/ D.S. Bethune
Phys. Rev.
A23, 3139 (1981)

/46/ W. Heitler — The Quantum Theory of Radiation
Clarendon Press, Oxford (1954)

/47/ E.A. Stappaerts — IEEE
QE 12, 330 (1976)

/48/ C. Leubner et al. — Opt. Comm.
36, 205 (1981)

/49/ C.E. Moore — Atomic Energy Levels
US Gov. Pr. Off.
Washington DC (1949)

/50/ D' Ans-Lax — Taschenbuch f. Chemiker und
Physiker, S.1-900
Springer, Berlin (1967)

/51/ G.V. Verkin et al. — Sov. J. Q. El.
6, 369 (1976)

/52/ C.H. Skinner
H.P. Palenius — Opt. Comm.
18, 335 (1976)

/53/ T.W. Hänsch — Appl. Opt.
11, 895 (1972)

/54/ C.R. Vidal
J. Cooper — J. Appl. Phys.
40, 3370 (1969)

/55/ J. Bohdanski
H.E. Schins — J. Phys. Chem.
71, 215 (1967)

/56/ H. Schulte — MPI - PAE/Extraterr. 63
Garching (1972)

/57/ J. Heinrich — Diplomarbeit Düsseldorf (1977)

/58/ C.R. Vidal, F.B. Haller — Rev. Sci. Inst. 42, 1779 (1971)

/59/ B.M. Miles, W.L. Wiese — NBS Tec. Note 474 (1969)

/60/ P. Hafner, W.H.E. Schwarz — J. Phys. B11, 2975 (1978)

/61/ W.H.E. Schwarz — Privatmitteilung

/62/ J. Reif — Dissertation Universität München (1981)

/63/ Espe — Werkstoffkunde der Vochvakuumtechnik, Bd. 3 VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin (1960)

/64/ B. Koch — Diplomarbeit Düsseldorf (1980)

/65/ A.H. Kung et al. — Phys. Rev. Lett. 29, 985 (1972)

/66/ R. Florian et al. — Verh. DPG IV 17, 455 (1982)

/67/ Landold-Börnstein — Zahlenwerte und Funktionen Bd. II, 8.Teil, S. 6-885 Springer, Berlin (1950)

/68/ W. Behmenburg — Ann. Univ. Sarviensis 10 (1973)

/69/ H. Ibowski, A. Schnitzer — Privatmitteilung

/70/ D.J. Jackson, J.J. Wynne — Phys. Rev. Lett. 49, 543 (1982)

/71/ R.W. Dichburn — Proc. Phys. Soc. 85, 193 (1965)

/72/ J.A.I. Craigie — Num. Anal. Rep. 11, Univ. Manchester (1975)

/73/ F.T. Krogh — J. Num. Anal 10, 949 (1973)

/74/ W. Demtröder — Grundlagen und Techniken der Laserspektroskopie, S. 52 ff Springer, Berlin (1977)

Anhang A

Verwendete Größen

Das in 1.5. diskutierte Vierniveausystem ist realisiert durch die vier tiefsten Singulett-Zustände im Cadmium-Termschema, $5s^2\ {}^1S_0$, $5s5p\,{}^1P_1$, $5s6s\,{}^1S_0$ und $5s6p\,{}^1P_1$ (Fig. 12). Die im folgenden (Tab. 3) aufgelisteten Termenergieen sind den Tabellen von Moore /49/ entnommen, die Dipolmatrixelemente wurden von Schwarz /61/ berechnet; aus ihnen lassen sich die Lebensdauern der angeregten Zustände ableiten. Experimentelle Brechungsindices für das Buffergas Helium sind in der Literatur /67/ zu finden. Die atomaren Linienbreiten wurden durch Standardformeln abgeschätzt /68/, wobei als ausschließlicher Verbreiterungsmechanismus Stöße mit dem Buffergas angenommen wurden. Die übrigen Zahlenwerte wurden an die apparativen Bedingungen des Experiments angepaßt.

Tab. 3: Daten für die Modellrechnungen zu den Cadmium-Experimenten

Atomare Daten von Cadmium

Termlagen

$\Omega_{12} = 8{,}2 \times 10^{15}$ Hz

$\Omega_{13} = 1{,}0 \times 10^{16}$ Hz

$\Omega_{14} = 1{,}1 \times 10^{16}$ Hz

Matrixelemente

$\mu_{12} = 1{,}8 \times 10^{-27}$ Ccm

$\mu_{23} = 1{,}2 \times 10^{-27}$ Ccm

$\mu_{34} = 4{,}1 \times 10^{-27}$ Ccm

$\mu_{41} = 4{,}7 \times 10^{-28}$ Ccm

Linienbreiten

$\Gamma_{13} = \Gamma_L = 2{,}6 \times 10^{11}$ Hz

$\Gamma_{12} = \Gamma_L = 2{,}6 \times 10^{11}$ Hz

$\Gamma_{23} = 2{,}0 \times 10^{10}$ Hz

Longit. Relaxationsraten

$\Gamma_{22} = 7{,}7 \times 10^{8}$ Hz

$\Gamma_{33} = 3{,}3 \times 10^{7}$ Hz

Helium-Suszeptibilitäten

$N \cdot \mathrm{Re}\chi^{(1)}(375) = 4{,}29 \times 10^{-5}$

$N \cdot \mathrm{Re}\chi^{(1)}(1040) = 4{,}23 \times 10^{-5}$

$N \cdot \mathrm{Re}\chi^{(1)}(159) = 4{,}66 \times 10^{-5}$

} bei $N_{He} = 1{,}8 \times 10^{19}$ cm^{-3}

Experimentelle Parameter

Schichtlänge : L = 8cm

Cd-Teilchendichte : $N = 10^{16} - 10^{17}$ cm^{-3}

Primärintensität : $I_L = 5 \times 10^{6} - 5 \times 10^{8}$ W/cm^2 (w_0 = 0,2 mm)

Resonanzabweichung : $|\Delta| = 0 - 5 \times 10^{12}$ Hz

Anhang B

Bei den Experimenten, die bei festfrequenter Laseranregung (abgestimmt auf das Maximum der Idleremission) durchgeführt wurden, besteht eine Unsicherheit bezüglich der Resonanzabweichung Δ, da die genaue Position der Zweiphotonenresonanz nicht bestimmt wurde. In den Rechnungen, mit denen diese Experimente beschrieben werden, ist man daher auf einen Fit der Resonanzabweichung Δ angewiesen.

Hierzu werden die gemessenen Abhängigkeiten $I_I(I_L)$, $I_F(I_L)$ und $I_I(N)$ zusammen mit den für verschiedene Δ im Bereich $0 - 7{,}5 \times 10^{11}$ Hz berechneten Abhängigkeiten dargestellt. Die Abhängigkeit $I_F(N)$ wurde zum Fit nicht mit herangezogen, da hier in der Teilchendichteskala keine Übereinstimmung zwischen Rechnung und Experiment, unabhängig von der Wahl von Δ, erzielt werden konnte.

Es zeigte sich, daß man eine optimale Übereinstimmung mit den Experimenten für alle Abhängigkeiten erreicht, wenn in den Rechnungen Δ zu $2{,}5 \times 10^{11}$ Hz gewählt wird.

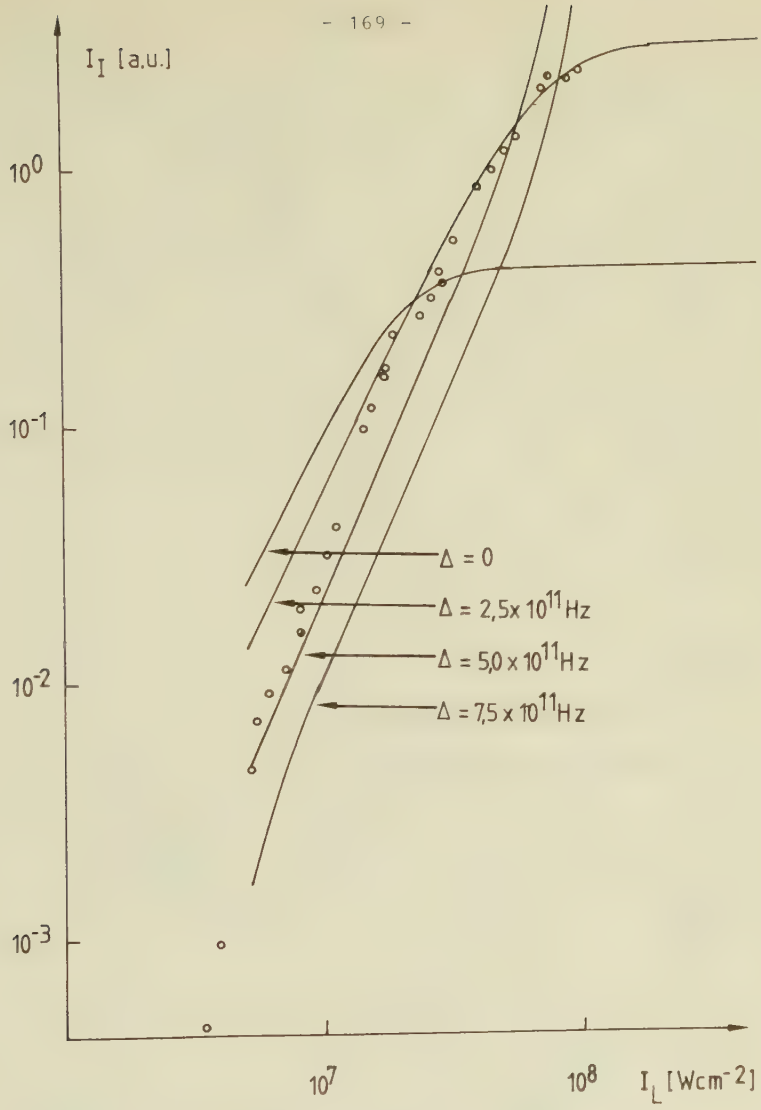
I_I [a.u.]
10^0
10^{-1}
10^{-2}
10^{-3}
$\Delta = 0$
$\Delta = 2{,}5 \times 10^{11}$ Hz
$\Delta = 5{,}0 \times 10^{11}$ Hz
$\Delta = 7{,}5 \times 10^{11}$ Hz
10^7
10^8
I_L [Wcm^{-2}]

Fig. 34

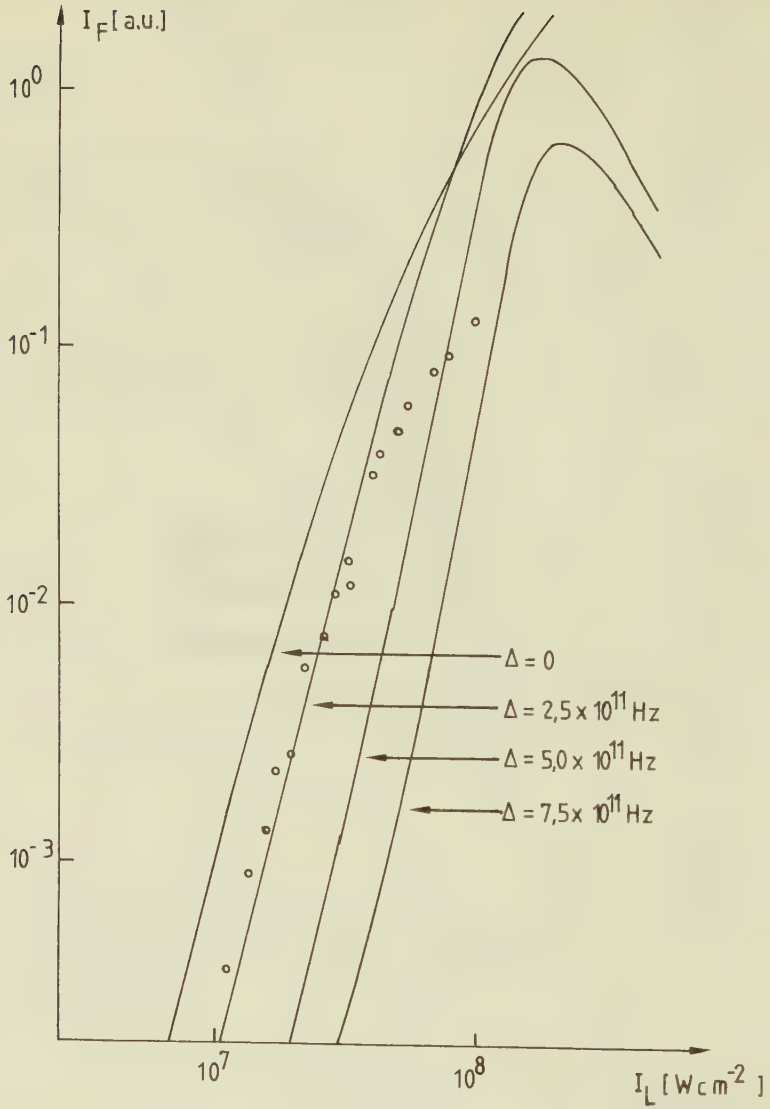
I_F [a.u.]
10^0
10^{-1}
10^{-2}
10^{-3}
$\Delta = 0$
$\Delta = 2{,}5 \times 10^{11}$ Hz
$\Delta = 5{,}0 \times 10^{11}$ Hz
$\Delta = 7{,}5 \times 10^{11}$ Hz
10^7
10^8
I_L [W cm^{-2}]

Fig. 35

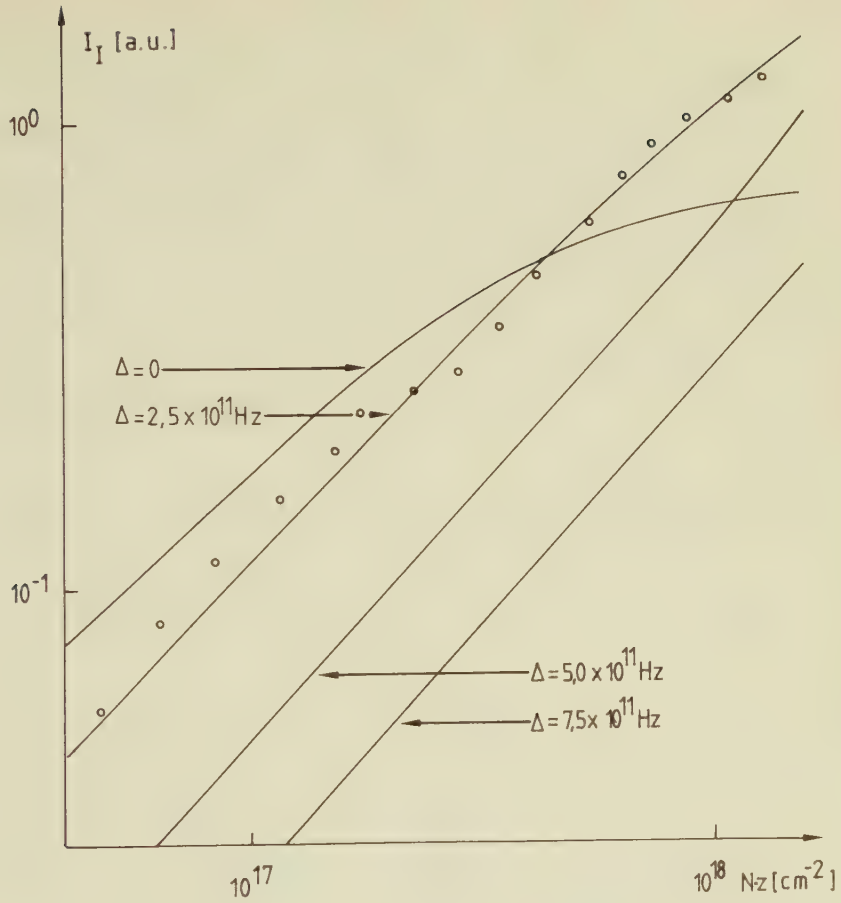
I_I [a.u.]
10^0
10^{-1}
$\Delta = 0$
$\Delta = 2,5 \times 10^{11}$ Hz
$\Delta = 5,0 \times 10^{11}$ Hz
$\Delta = 7,5 \times 10^{11}$ Hz
10^{17}
10^{18} N·z [cm^{-2}]

Fig. 36

Anhang C

Abschätzung zur Phasenanpassung bei der Summenfrequenzmischung

Aus den Gleichungen (28-30) (s. 1.5.1.) erhält man die Phasenfehlanpassung Δk für ein Cadmium-Helium-Gemisch zu

$$\Delta k = (N_{Cd} Q_{Cd} + N_{He} Q_{He})/c \tag{99}$$

mit

$$Q_x = (\omega_F \, n_{F,x} - 2\omega_L \, n_{L,x} - \omega_I \, n_{I,x})/N_x \tag{100}$$

Berücksichtigt man (Gl. 28) und die Frequenzbedingung

$$\omega_F = 2\omega_L + \omega_I \tag{101}$$

so ergibt sich

$$Q_x = (\omega_F \, \mathrm{Re}\chi^{(1)}_{F,x} - 2\omega_L \, \mathrm{Re}\chi^{(1)}_{L,x} - \omega_I \, \mathrm{Re}\chi^{(1)}_{I,x})/2 \tag{102}$$

Mit der Bedinung für maximale Konversion bei $\Delta k = 0$

$$0 = \{(N_{Cd})_{max} \, Q_{Cd} + N_{He} \, Q_{He}\}/c \tag{103}$$

und unter der Annahme, daß die Oszillationsperiode durch

$$\Delta k \cdot L = m \cdot 2\pi \tag{104}$$

gegeben ist, d.h.

$$\left|\frac{2\pi}{L}\right| = (\Delta N_{Cd} Q_{Cd})/c \qquad (105)$$

erhält man für das Verhältnis aus der Position des Maximums $(N_{Cd})_{max}$ zur Oszillationsperiode ΔN_{Cd}

$$\frac{(N_{Cd})_{max}}{\Delta N_{Cd}} = \left|\frac{L \cdot N_{He} Q_{He}}{2\pi c}\right| \qquad (106)$$

Setzt man die Daten aus Tab. 3 ein, so ergibt sich

$$\frac{(N_{Cd})_{max}}{\Delta N_{Cd}} = 0{,}95 \qquad (107)$$

Bei dieser Abschätzung wurde angenommen, daß sich die Oszillationsperiode aus der Bedingung (104) ergibt. Der Annahme liegt die Näherung zugrunde, den Phasenfaktor $e^{-i\Delta kz}$ in der Wellengleichung (46c) gesondert zu von den übrigen z-abhängigen Größen bei der Integration zu betrachten. Obwohl dieses Verfahren nur in Bereichen gültig ist, wo Δk hinreichend groß gegenüber der räumlichen Änderung der in (Gl. 46c) auftretenden Faktoren ist, hat es sich doch als geeignet erwiesen, die Größenordnung des Verhältnisses aus Position des Maximums zur Oszillationsperiode abzuschätzen.

Geräteliste

/ G1/	Farbstofflaser	Eigenbau	Phys. Inst. I/ Uni Düsseldorf
/ G2/	Farbstofflaser	Eigenbau	Phys. Inst. I/ Uni Düsseldorf
/ G3/	Farbstofflaser	FL 2000	Lambda Physik
/ G4/	Heatpipe-Ofen	Eigenbau	Phys. Inst. I/ Uni Düsseldorf
/ G5/	Photodiode	PIN 10 UV	UDT
/ G6/	Spektrometer	1704	Spex
/ G7/	Photomultiplier	R 166	Hamamatsu
/ G8/	Integrator	LF 300	Lambda Physik
/ G9/	Kompensograph	K III	Siemens
/G10/	Stickstofflaser	M 100 A	Lambdaphysik
/G11/	Interferenzfilter	600 nm peak	Zeiss
/G12/	Fabry-Perot-Etalon	600 nm peak d=o,15 mm	Zeiss
/G13/	Fabry-Perot-Etalon	600 nm peak d=1 mm	Zeiss
/G14/	Holographisches Gitter	24 PS 7109	Zeiss
/G15/	Teleskop	25 fach	Zeiss
/G16/	Excimerlaser	EMG 500	Lambda Physik
/G17/	Spalt	03 6105	Spindler & Hoyer
/G18/	Diffusionspumpe	170L	Leybold-Heraeus
/G19/	Kompressions-manometer	McLeod	Leybold-Heraeus
/G20/	Induktionsofen	RGI 8/500	AEG
/G21/	Farbglasfilter	UG5	Schott

/G22/	Photomultiplier	9783 B	EMI
/G23/	Neutralfilter	LF 303	Lambda Physik
/G24/	Photodiode	MD 1	Monsanto
/G25/	Kalorimeter	Thermopile 142	Laser Instrumentation
/G26/	Oszillograph	7104	Tektronix
/G27/	Cadmiumzelle	Eigenbau	Phys. Inst. I/ Uni Düsseldorf
/G29/	Fabry-Perot-Etalon	FL 72	Lambda Physik
/G30/	Cu-Asbest-Ringe	20 X 14	Kfz-Zubehörhandel
/G31/	MgF_2- Scheiben		Korth
/G32/	Spektrometer	1500A	Spex
/G33/	Heizelement	Thermocoax	Philips
/G34/	Thermostat	Thermosistor TP 24	Haake
/G35/	Aluminium-oxydkeramik	Kaowool	Triton
/G36/	Rohrfedermanometer	FA160	Wallace & Tiernan
/G37/	Farbglasfilter	RG 665	Schott
/G38/	Photodiode	BPW 24	Siemens
/G39/	Pyroel. Detektor	J3-02	Molectron
/G40/	Oszillograph	5103N/5A22	Tektronix
/G41/	Photomultiplier	541-G-08-18-039	EMR
/G42/	Photomultiplier	G 26 E 315	EMI
/G43/	Interferenzfilter	122-N	ARC

Dank

Die vorliegende Arbeit wurde am Physikalischen Institut I der Universität Düsseldorf angefertigt.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. W. Behmenburg, der mir das Thema stellte und mit beständigem Interesse sowie wertvollen Diskussionen und Anregungen den Fortgang der Arbeit wesentlich gefördert hat.

Die vorliegende Arbeit wurde im Rahmen zweier Forschungsprojekte durchgeführt. Ich danke dem Wissenschaftsministerum NRW sowie der Deutschen Forschungsgemeinschaft für die Bereitstellung von Personal- und Sachmitteln, ohne die die Arbeit nicht möglich gewesen wäre.

Herrn Dr. K. Hollenberg gilt mein spezieller Dank für die Konzeption und den Aufbau des Microcomputersystems, entscheidende Voraussetzung für die Durchführung und Auswertung eines wesentlichen Teils der Messungen.

Die in der vorliegenden Arbeit beschriebenen zeitaufgelösten Messungen wurden in Zusammenarbeit mit dem Institut Experimentalphysik IV, Universität Düsseldorf, durchgeführt. Ich danke Herrn Prof. Dr. D. Schmid für sein Interesse sowie für die Bereitstellung des Nachweissystems und den Herren Dipl. Phys. Florian und Dr. Schwan für die Hilfe bei der

Durchführung der Messungen.

Herrn Dipl. Math. Schott, Rechenzentrum der Universität Düsseldorf, danke ich für die Hilfe bei der Umstellung der Fortran-Programme von der DVA TR 445 auf die DVA Siemens 7.760.

Allen Mitgliedern des Physikalischen Instituts I der Universität Düsseldorf, besonders aber den Herren Dipl. Phys. H. Ibowski, B. Koch und A. Schnitzer bin ich für die vielfältige Unterstützung bei der Durchführung der Experimente zu Dank verpflichtet.

Den Angestellten der Feinmechanikwerkstatt des Physikalischen Instituts I unter der Leitung von Herrn Bölke sowie der Zentralwerkstatt Physik unter der Leitung von Herrn Schiene danke ich für präzise Arbeiten und wertvolle Ratschläge beim Aufbau der Apparaturen.

Herrn Dr. P. Meystre, MPI für Quantenoptik, sowie seiner Mitarbeiterin Frau Dipl. Phys. A. Guzmán danke ich für die Durchführung zeitabhängiger semiklassischer Rechnungen zu den Cadmiumexperimenten und die wertvollen Diskussionen zur theoretischen Behandlung der Problematik.

Herrn Prof. Dr. W. H. E. Schwarz, GHS Siegen, danke ich für die numerische Berechnung von Barium- und Cadmium-oszillatorenstärken.

Schließlich danke ich Frau F. Vollmer für die rasche Erledigung der Schreibarbeiten.

Lebenslauf

26.2.1953	geboren in Stuttgart als Sohn des Ingenieurs Walter Heinrich und seiner Ehefrau Gerda, geb. Kempke.
1959-1963	Besuch zweier Volksschulen in Düsseldorf
1963	Aufnahme in das Staatl. Max-Planck-Gymnasium, Düsseldorf
1971	Abitur
1971	Immatrikulation im Fach Physik an der Universität Düsseldorf
1973	Vordiplom-Prüfung
1975-1977	Studentische Hilfskraft im Anfängerpraktikum für Mediziner und Naturwissenschaftler
1977	Diplom-Prüfung
1977-1982	Promotionsstudium an der Universität Düsseldorf
1978-1981	Wissenschaftliche Hilfskraft im Rahmen eines Forschungsprojektes des Landes NRW
seit 1979	Wissenschaflicher Angestellter im Rahmen eines von der DFG geförderten Forschungsprojektes

FOTODRUCK J. MAINZ – Telefon: (02 41) 2 73 05
Neupforte 13, Nähe Markt, 5100 Aachen